

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6179278号

(P6179278)

(45) 発行日 平成29年8月16日 (2017. 8. 16)

(24) 登録日 平成29年7月28日 (2017. 7. 28)

(51) Int. Cl.	F 1
H 0 5 B 33/10 (2006. 01)	H 0 5 B 33/10
H 0 5 B 33/12 (2006. 01)	H 0 5 B 33/12 C
H 0 1 L 51/50 (2006. 01)	H 0 5 B 33/14 A

請求項の数 4 (全 85 頁)

(21) 出願番号	特願2013-178143 (P2013-178143)	(73) 特許権者	000001270
(22) 出願日	平成25年8月29日 (2013. 8. 29)		コニカミノルタ株式会社
(65) 公開番号	特開2015-46364 (P2015-46364A)		東京都千代田区丸の内二丁目7番2号
(43) 公開日	平成27年3月12日 (2015. 3. 12)	(74) 代理人	110001254
審査請求日	平成27年9月25日 (2015. 9. 25)		特許業務法人光陽国際特許事務所
前置審査		(72) 発明者	上澤 邦明
			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
		審査官	大竹 秀紀

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光パネルの製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

基板上に透明電極を含む一对の電極と有機機能層を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子を構成単位とする発光ユニットを複数積層してなり、かつ当該複数の発光ユニットが、個別に又は同時に、電氣的に駆動可能である発光パネルの製造方法であって、

各発光ユニットの有機エレクトロルミネッセンス素子に紫外線を照射して特定の発光パターンを付与する工程と、前記発光パターンを付与された各発光ユニットを積層する工程とを有し、前記特定の発光パターンを付与する工程において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に、紫外線の強度を多段階に変えて照射して、階調を有する前記特定の発光パターンを付与することを特徴とする発光パネルの製造方法。

10

【請求項 2】

前記複数の発光ユニットの発光色が、それぞれ異なることを特徴とする請求項 1 に記載の発光パネルの製造方法。

【請求項 3】

前記複数の発光ユニットが、それぞれ赤色、緑色及び青色を発光する 3 種の発光ユニットを有することを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の発光パネルの製造方法。

【請求項 4】

前記複数の発光ユニットの全ての発光色が白色であることを特徴とする請求項 1 に記載の発光パネルの製造方法。

【発明の詳細な説明】

20

【技術分野】

【0001】

本発明は、発光パネルの製造方法に関する。より詳しくは、発光表示パターンの形状精度（鮮鋭度）に優れ、同一表示領域中に異なる画像を個別又は同時に表示することができる発光パネルの製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、平面状の光源体として、導光板を用いた発光ダイオード（Light Emitting Diode：LED）及び有機発光ダイオード（Organic Light Emitting Diode：OLED、以下、「有機エレクトロルミネッセンス素子」ともいう。）が注目されている。導光板LEDについては、一般照明のみならず、液晶表示装置（Liquid Crystal Display：LCD）用バックライトなど、様々な場面、用途で利用されるようになってきた（例えば、特許文献1参照。）。 10

【0003】

特に、2008年頃から、スマートデバイス（スマートフォン、タブレット）の生産量が伸び、導光板LEDが利用されている。

【0004】

主には、メインディスプレイ（例えば、LCD）のバックライト用途であるが、その他の使用用途として、デバイス下部にある共通機能キーボタンのバックライトとしても、導光板LEDが組み込まれることが多くなっている。 20

【0005】

共通機能キーボタンには、主に、ホーム（四角形などのマークで表示）、戻る（矢印マークなどで表示）、検索（虫眼鏡マークなどで表示）の3種類が利用されることが多い。

【0006】

前述の特許文献1に記載されている方法では、これら共通機能キーボタンは、カバーガラスに表示したいマークのパターンを印刷しておき、カバーガラスの内部に上記のような導光板LEDを設置し、必要な場面に応じてLEDが発光して光が導光板（フィルム）を通して導光され、パターン部分に印刷されたドット形状の拡散部材を通して表示側へ光を取り出す構成になっている。 30

【0007】

しかしながら、特許文献1で開示されている方法では、表示画面上の同一の位置に異なる形状の画像を表示することができない。

【0008】

一方、有機EL素子の製造時に、有機機能層あるいは構成電極層の少なくとも一層にフォトリソを介して、紫外光を照射し、所定のパターン領域の機能を変化させる特定の発光パターンを有する有機発光素子が提案されている（例えば、特許文献2参照。）。 40

【0009】

しかしながら、特許文献2で開示されている方法でも、形成することのできるパターンは、同一平面上の異なる領域には異なるパターンを形成することはできるが、同一の領域内に、異なるパターンを形成することができない。 40

【0010】

また、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。）製膜時に、マスクによりキー表示に対応した形状をパターンニングすることも可能ではあるが、場面表示に応じて、同一場所で任意のマーク形状を切り替えるような発光パターンは不可能であった。

【0011】

さらに、製膜時にマスクを用いたパターンニング形成方法では、解像度が低いという問題点もあった。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0012】

【特許文献1】米国特許第8330724号明細書

【特許文献2】特開2012-28335号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

本発明は、上記問題・状況に鑑みてなされたものであり、その解決課題は、発光表示パターンの形状精度（鮮鋭度）に優れ、発光パターンの切り替えが可能で、同一表示領域中に異なる画像を個別又は同時に表示することができる発光パネルの製造方法を提供することである。

10

【課題を解決するための手段】

【0014】

本発明者は、上記課題を解決すべく、上記問題の原因等について検討した結果、有機EL素子に紫外線の強度を多段階に変えて照射して、階調を有する異なる発光パターンを付与した複数の発光ユニットを作製し、その後各発光ユニットを積層することにより、上記課題を解決することを見出し本発明に至った。好ましい態様として前記複数の発光ユニットが、それぞれ赤色、緑色及び青色を発光する3種の発光ユニットを有することにより、フルカラーの画像を表示することも可能になる。

【0015】

すなわち、本発明に係る上記課題は、以下の手段により解決される。

20

【0016】

1. 基板上に透明電極を含む一对の電極と有機機能層を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子を構成単位とする発光ユニットを複数積層してなり、かつ当該複数の発光ユニットが、個別に又は同時に、電氣的に駆動可能である発光パネルの製造方法であって、

各発光ユニットの有機エレクトロルミネッセンス素子に紫外線を照射して特定の発光パターンを付与する工程と、前記発光パターンを付与された各発光ユニットを積層する工程とを有し、前記特定の発光パターンを付与する工程において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に、紫外線の強度を多段階に変えて照射して、階調を有する前記特定の発光パターンを付与することを特徴とする発光パネルの製造方法。

30

【0017】

2. 前記複数の発光ユニットの発光色が、それぞれ異なることを特徴とする第1項に記載の発光パネルの製造方法。

【0018】

3. 前記複数の発光ユニットが、それぞれ赤色、緑色及び青色を発光する3種の発光ユニットを有することを特徴とする第1項又は第2項に記載の発光パネルの製造方法。

【0019】

4. 前記複数の発光ユニットの全ての発光色が白色であることを特徴とする第1項に記載の発光パネルの製造方法。

【発明の効果】

【0020】

40

本発明の上記手段により、発光表示パターンの形状精度（鮮鋭度）に優れ、発光パターンの切り替えが可能で、同一表示領域中に異なる画像を個別又は同時に表示することができる発光パネルの製造方法を提供することができる。

【0021】

本発明の効果の発現機構ないし作用機構については、以下のように推察している。

【0022】

従来のように一つの有機EL素子に光照射やマスクを用いて複数の発光パターンを有する有機EL素子を作製するのではなく、複数の有機EL素子にそれぞれ異なる発光パターンを紫外線照射して付与し、発光ユニットを作製し、その後各発光ユニットを積層することにより、独立に複数の画像を、同一平面領域に表示することが可能になる。

50

【図面の簡単な説明】

【0023】

【図1】 2種の発光ユニットからなる発光パネルの構成の一例を示す概略断面図

【図2】 第1発光ユニット及び第2発光ユニットに形成する2種の表示画像の一例を示す模式図

【図3】 2種の異なる画像を表示する方法の一例を説明する模式図

【図4】 第1発光ユニット及び第2発光ユニットに形成する他の表示画像の例を示す模式図

【図5】 赤色、緑色及び青色を発光する3種の発光ユニットを有する表示画像の一例

【図6】 実施例で作製した発光パネルの層構成を示す概略断面図

10

【図7】 実施例で作製した他の発光パネルの層構成を示す概略断面図

【発明を実施するための形態】

【0024】

本発明の発光パネルの製造方法は、基板上に透明電極を含む一对の電極と有機機能層を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子を構成単位とする発光ユニットを複数積層してなり、かつ当該複数の発光ユニットが、個別に又は同時に、電氣的に駆動可能である発光パネルの製造方法であって、

各発光ユニットの有機エレクトロルミネッセンス素子に紫外線を照射して特定の発光パターンを付与する工程と、前記発光パターンを付与された各発光ユニットを積層する工程とを有し、前記特定の発光パターンを付与する工程において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に、紫外線の強度を多段階に変えて照射して、階調を有する前記特定の発光パターンを付与することを特徴とする。この特徴は、請求項1から請求項4までの請求項に係る発明に共通する技術的特徴である。

20

【0025】

本発明の実施態様としては、前記複数の発光ユニットの発光色が、それぞれ異なることが好ましい。また、前記複数の発光ユニットが、それぞれ赤色、緑色及び青色を発光する3種の発光ユニットを有することが、フルカラーの画像表示が可能となることから、好ましい。

【0026】

さらに、本発明においては、複数の発光ユニットの全ての発光色が白色であることが好ましい。

30

【0027】

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、本願において、「～」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。

【0028】

《有機EL素子の構成》

(有機EL素子の全体構成概要)

本発明の発光パネルの製造方法は、基板上に透明電極を含む一对の電極と有機機能層を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子を構成単位とする発光ユニットを複数積層してなり、かつ当該複数の発光ユニットが、個別に又は同時に、電氣的に駆動可能である発光パネルの製造方法であって、各発光ユニットの有機エレクトロルミネッセンス素子に紫外線を照射して特定の発光パターンを付与する工程と、前記発光パターンを付与された各発光ユニットを積層する工程とを有し、前記特定の発光パターンを付与する工程において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に、紫外線の強度を多段階に変えて照射して、階調を有する前記特定の発光パターンを付与することを特徴とする。

40

【0029】

本発明者は、同一領域内に、異なる画像を複数表示することができる方法について、検討を進めた結果、例えば3層からなる有機EL素子に、光照射して複数の発光パターンを有する有機EL素子を作製しようとしても、3層の中間に位置する有機EL素子を独立に

50

光照射することができないため不可能であった。複数積層した有機EL素子に光照射するのではなく、各発光ユニットの構成単位となる有機エレクトロルミネッセンス素子に個別に紫外線を照射して特定の発光パターンを付与する工程と、前記発光パターンを付与された各発光ユニットを積層する工程とを有し、前記特定の発光パターンを付与する工程において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に、紫外線の強度を多段階に変えて照射して、階調を有する前記特定の発光パターンを付与する製造方法とすることにより、独立に複数の画像を表示することが可能となる。

【0030】

図1は、本発明の製造方法で製造された発光パネルの構成の一例を示す概略断面図である。

10

【0031】

図1に示すように、発光パネル1は、有機EL素子を構成単位とする2種の発光ユニットからなる。すなわち、基板A1上に、電極（陽極）B1、有機機能層ユニットC1、透明電極（陰極）D1、透明封止部材E1からなる第1発光ユニット（1-1U）と、透明基板A2上に、透明電極（陽極）B2、有機機能層ユニットC2、透明電極（陰極）D2、透明封止部材E2からなる第2発光ユニット（1-2U）とから構成されている。

【0032】

ここで、本発明において、有機機能層とは有機化合物を含有する層であり、有機機能層ユニットとは複数の有機機能層を含むユニットをいう。

【0033】

20

また、本発明において第1発光ユニットとは、発光パネルを観察するとき、最も遠い側の発光ユニットを指し、近くなる順に第2発光ユニット、第3発光ユニットという。

【0034】

有機機能層ユニットC1及び有機機能層ユニットC2には、それぞれ異なる表示画像を形成することができる。表示画像の形成方法としては、有機EL素子を作製した後、透明基板側又は透明電極側から、例えば、マスク部材を介して紫外線照射して、それぞれ異なる画像を有機EL素子にパターン化して第1発光ユニットと第2発光ユニットを作製し、その後2種の発光ユニットを、積層する工程において積層し発光パネルを作製することができる。詳細な作製方法については、後述の有機EL素子の製造方法で説明する。

【0035】

30

また、各発光ユニットの電極（陽極）と電極（陰極）間はリード線で配線され、それぞれの接続端子に駆動電源として2～40Vの範囲内で印加することにより、第1発光ユニットと第2発光ユニットを独立して発光させることができる。このようにして異なる画像を、独立して発光させることができる。発光ユニットが3層以上となっても同様にして異なる画像を有機EL素子にパターン化して形成した発光ユニットを積層させればよい。

【0036】

上記のような構成の有機EL素子においては、発光時にはそれぞれ異なる画像を表示するが、非発光時には、形成した発光パターンは、全く出現しない構成となっている。

【0037】

（発光ユニットの画像）

40

次いで、本発明の発光パネルにより表示する異なる画像について説明する。本発明の発光パネルは、異なる画像を有する複数の発光ユニットを個別に又は同時に、電氣的に駆動可能である。

【0038】

図2は、第1発光ユニットと第2発光ユニットとが形成する2種の異なる表示画像の一例を示す模式図である。

【0039】

例えば、図1における第1発光ユニットの電極B1と、透明電極D1間に駆動電圧を印加して、図2（A）で示す画像を表示する。この時、背景21は、紫外線照射により形成された発光機能が変調されている領域、すなわち非発光領域であり、上向きの矢印画像2

50

2 Aは、紫外線照射を行わなかった変調されていない領域、すなわち発光領域が形成され、表示画像として上向き矢印画像を表示する。

【0040】

同様に、図1における第2発光ユニットの透明電極B2と、透明電極D2間に駆動電圧を印加して、図2の(B)で示す画像を表示する。この時、背景21は、紫外線照射により形成された発光機能に変調されている領域、すなわち非発光領域であり、右向きの矢印画像22Bは、紫外線照射を行わなかった変調されていない領域、すなわち発光領域が形成され、表示画像として右向き矢印画像を表示する。

【0041】

図3は、2種の異なる画像を表示する方法の一例を説明する模式図である。

10

【0042】

図2に示すような上向き矢印画像及び右向き矢印画像をそれぞれ独立して表示する方法について、更に説明する。

【0043】

図3において、画像Eは、第1発光ユニットの電極B1と、透明電極D1に挟まれた、有機機能層ユニットC1の発光パターン（上向き矢印）であり、画像Fは、第2発光ユニットの透明電極B2と、透明電極D2間に挟まれた、有機機能層ユニットC2の発光パターン（右向き矢印）である。

【0044】

図3においては、画像Eと画像Fとはそれぞれ重なり合わない状態で表示されているが、重なり合って画像表示を行う方法でも良い。

20

【0045】

図4は、有機機能層ユニットC1及び有機機能層ユニットC2に形成する2種の異なる表示画像の他の例を示す模式図である。

【0046】

図2及び図3においては、表示画像として、上向き及び右向きの矢印画像を例に説明したが、本発明の発光パネルにおいては、その他に、適用する分野に応じて、図4の(1)に記載のような「○」、「×」表示、(2)に記載のような交通標識の異なる種類の表示、(3)に記載のような横断歩道等における信号表示（「進め」と「止まれ」）、(4)に示すような異なる幾何学図形のそれぞれ個別表示と、両者を組み合わせた同時表示（合成パターン）等を挙げることができる。

30

【0047】

表示画像の発光色は、白色光であることが好ましい。具体的には、発光ユニットの構成単位となる有機EL素子に含まれる複数の発光材料により、白色に発光することが好ましい。このような複数の発光色の組み合わせとしては、青色、緑色、青色の3原色の3種の発光極大波長を有する発光材料を含有させたものでもよいし、青色と黄色、青緑と橙色等の補色の関係を利用した2種の発光極大波長を有する発光材料を含有したものでもよい。

【0048】

発光色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩学会編、東京大学出版会、1985）の108頁の図4.16において、分光放射輝度計CS-2000（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求めることができる。

40

【0049】

また、発光パネルが白色に発光するとき、白色とは、2度視野角正面輝度を上記方法により測定した際に、 1000 cd/m^2 でのCIE1931表色系における色度が $X=0.33\pm0.07$ 、 $Y=0.33\pm0.1$ の領域内にあることが好ましい。

【0050】

なお、本発明の発光パネルにおいては、上記で例示したような画像形状を変化させることのほかに、第1発光ユニットと第2発光ユニットとで発光色をそれぞれ変化させて表示することもできる。

50

【0051】

図2及び図3では、2種の異なる画像を個別に又は同時に表示する場合を説明したが、3層以上の画像を同様に個別に又は同時に表示することもできる。

【0052】

図5は、赤色、緑色及び青色を発光する3種の発光ユニットを有する表示画像の一例である。階調を有する自然画である図5(A)の画像から、赤色(R)、青色(B)及び緑色(G)の3色に分解したRGBの各々の画像データを基に、赤色、青色及び緑に発光する有機EL素子にそれぞれ、紫外線照射して、第1発光ユニット(図5(R))、第2発光ユニット(図5(B))及び第3発光ユニット(図5(G))を作製し、これらを積層することで自然画を発光パネルに表示することができる。

10

【0053】

この場合、階調を有する画像を表示させる必要があるため、紫外線照射は、図2及び図3で説明した紫外線照射とは異なり、非発光と発光の2つの領域からなる発光パターンではなく、例えば、RGB用のそれぞれ階調を有するマスクを介して紫外線照射することにより、RGBに発光する発光ユニットをそれぞれ作製することができる。あるいは、紫外線照射の強度を、画像の階調に合わせて多段階に変えて直接照射することにより階調を有する発光ユニットを作製することもできる。さらには、網点を用いて3色分解し、3色分解した網点画像を介して紫外線照射することにより、階調を有する発光ユニットを作製することもできる。

20

【0054】

RGBの発光ユニットのそれぞれの発光波長は、赤色(R)の場合570～650nmの範囲内、緑色(G)の場合500～569nmの範囲内及び青色(B)の場合、440～499nmの範囲内であることが好ましい。

【0055】

《発光パネルの製造方法》

本発明の発光パネルの製造方法は、基板上に透明電極を含む一対の電極と有機機能層を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子を構成単位とする発光ユニットを複数積層してなり、かつ当該複数の発光ユニットが、個別に又は同時に、電氣的に駆動可能である発光パネルの製造方法であって、各発光ユニットの有機エレクトロルミネッセンス素子に紫外線を照射して特定の発光パターンを付与する工程と、前記発光パターンを付与された各発光ユニットを積層する工程とを有し、前記特定の発光パターンを付与する工程において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に、紫外線の強度を多段階に変えて照射して、階調を有する前記特定の発光パターンを付与することを特徴とする。

30

【0056】

なお、ここでいう「発光パターン」とは、発光ユニットにより表示される図2、図4及び図5に例示したような図案(図の柄や模様)、文字、画像等の画像形状情報や、異なる発光色で発光させた色情報を含む。

【0057】

本発明の製造方法は(1)有機EL素子製造工程、(2)紫外線照射工程及び(3)積層工程を含むことが好ましい。

40

【0058】

(1)有機EL素子製造工程

有機EL素子製造工程は発光ユニットを構成する有機EL素子を製造する工程である。本発明に係る有機EL素子は、基板上に透明電極を含む一対の電極と有機機能層を備えている。

【0059】

まず、基板A1を準備し、当該基板1上に、透明電極の形成物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を1μm以下、好ましくは10～200nmの範囲内の厚さになるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、電極B1を形成する。

【0060】

50

次に、この電極 B 1 上に、有機機能層ユニット C 1 として、例えば、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層等を順に積層して形成する。

【0061】

これらの各層の形成は、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、印刷法等があるが、均質な層が得られやすく、かつ、ピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法又はスピンコート法が特に好ましい。さらに、層ごとに異なる形成法を適用してもよい。これらの各層の形成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、一般にボート加熱温度 $50 \sim 450^{\circ}\text{C}$ 、真空度 $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ 、蒸着速度 $0.01 \sim 50 \text{ nm/秒}$ 、基板温度 $-50 \sim 300^{\circ}\text{C}$ 、層厚 $0.1 \sim 5 \mu\text{m}$ の範囲内で、各条件を適宜選択することが望ましい。

10

【0062】

これらの層を形成後、その上に透明電極 D 1 を形成する。

【0063】

次いで、透明電極 D 1 の上に透明封止部材 E 1 を形成して第 1 発光ユニットを構成する有機 EL 素子を製造する。

【0064】

同様にして、透明基板 A 2 上に、順次電極 B 2、有機機能層ユニット C 2、透明電極 D 2 及び透明封止部材 E 2 を形成して第 2 発光ユニットを構成する有機 EL 素子を製造する。

【0065】

発光ユニットをさらに設けるときは同様にして所望の数の発光ユニットを構成する有機 EL 素子を製造すればよい。

20

【0066】

ここで、第 1 発光ユニットにおける基板 A 1 と基板上の電極 B 1 は透明である必要はないが、第 1 発光ユニットの電極（陰極）D 1 及び第 2 発光ユニット以降の電極は透明電極であることが好ましい。このような構成とすることで、発光ユニットで発光する発光パターンを効率よく外部に表示することが可能になる。発光ユニットにおける電極、基板を全て透明とすることもできる。

【0067】

本発明において透明とは、光波長 550 nm での光透過率が 50% 以上であることをいう。好ましくは光透過率が 80% 以上で、より好ましくは光透過率が 90% 以上である。

30

【0068】

（2）紫外線照射工程

紫外線照射工程は、上記のようにして製造した各発光ユニットの有機エレクトロルミネッセンス素子に紫外線の強度を多段階に変えて照射して、階調を有する特定の発光パターンを付与する工程である。

【0069】

本発明においては、有機 EL 素子を作製したあと、各有機 EL 素子に個別に異なる発光パターンを付与することができる。透明基板、又は透明電極（封止側）のいずれから紫外線照射してもかまわない。紫外線照射により、発光機能に変調されている領域を形成することができる。

40

【0070】

ここで、紫外線照射により発光機能を変調させるとは、紫外線照射により、発光パターンを形成する有機機能層、例えば、正孔輸送材料等の機能を変化させることにより、当該発光ユニットの発光機能を変化させることをいう。紫外線照射の光強度又は照射時間等を適宜調整して、紫外線照射量を制御することにより、当該紫外線照射量に応じて紫外線照射部分の発光輝度を変化させることが可能である。紫外線照射量が多いほど発光輝度は減衰し、紫外線照射量が少ないほど発光輝度の減衰率は小さい。したがって、紫外線照射量が 0、すなわち、紫外線未照射の場合には、発光輝度は最大となる。

【0071】

50

発光パターンは、上記のように紫外線照射するとき、直接紫外線強度又は照射時間等を適宜調整しても良いし、マスクを介して紫外線照射することにより形成することもできる。紫外線照射に対して透過性の低い例えば金属のマスクを用いることにより、紫外線照射が0と100%の2つの領域に変調することができる。あるいは、紫外線照射の透過率を多段階有するマスクを用いて紫外線照射することにより、階調を有する画像となるよう発光機能を変調することもできる。

【0072】

このようなマスクの作製は、例えば、フォトレジストを塗布し、フォトマスクを用いて露光した後に現像を行うフォトリソグラフィプロセス、あるいは電子線リソグラフィプロセスにより行うことができる。

10

【0073】

また、カラー画像を扱うには、例えばアドビ社製フォトショップなどの画像編集ソフトを使用し、フルカラー画像データを赤色、緑色、青色に、それぞれ色分解した後に、階調を反転し、3色のマスク画像データを作成、その後赤色、緑色、青色のマスク画像データを再びグレースケールデータに変換し赤色、緑色、青色それぞれのマスク画像データを得ることができる。得られたマスク画像データを上記マスク作製法と同様な方法でマスクを作製できる。

【0074】

本発明においては、紫外線照射工程において照射される光は、紫外線である。

【0075】

20

ここで、本発明でいう紫外線とは、その波長がX線よりも長く、可視光線の最短波長より短い電磁波をいい、具体的には波長が1～400nmの範囲内のものである。

【0076】

紫外線の発生手段及び照射手段は、従来公知の装置等により紫外線を発生させ、かつ、照射すればよく、特に限定されない。具体的な光源としては、高圧水銀ランプ、低圧水銀ランプ、水素（重水素）ランプ、希ガス（キセノン、アルゴン、ヘリウム、ネオンなど）放電ランプ、窒素レーザー、エキシマレーザー（XeCl, XeF, KrF, KrClなど）、水素レーザー、ハロゲンレーザー、各種可視（LD）－赤外レーザーの高調波（YAGレーザーのTHG（Third Harmonic Generation）光など）等が挙げられる。

30

【0077】

以上により、異なる発光パターンを有する発光ユニットを製造することができる。

【0078】

（3）積層工程

積層工程は、前記発光パターンが付与された各発光ユニットを積層する工程である。各々の発光ユニットを積層する場合は、各発光ユニットが所定の位置となるように、位置合わせした後で固定することが好ましい。

【0079】

位置合わせする方法は、各発光ユニットとなる有機EL素子にアライメントマークを形成し、この印を基準として、紫外線照射して積層しても良いし、各発光ユニットにトンボを焼きこみ、各発光ユニットを発光させた状態で位置合わせしてもよい。アライメントマークやトンボは複数あることが好ましい。各発光ユニットを平行移動、回転等を行って位置合わせを行う。

40

【0080】

積層したあと、固定する方法は、機械的に固定しても良いし、接着剤等を用いて固定することもできる。

【0081】

積層に用いる接着剤は透明性の高いものであれば制限はないが、アクリル系粘着剤等を用いることができる。アクリル系粘着剤としては、例えば、3M社製高透明性接着剤転写テープ等を挙げることができる。

50

【0082】

このようにして、異なる発光パターンが付与された各発光ユニットが積層された発光パネルを製造することができる。

【0083】

このようにして作製された発光パネルは、例えば2種の発光ユニットからなる発光パネルの場合、第1発光ユニットのみを駆動すれば、図2の(A)に示す形状の発光パターンが観測され、第2発光ユニットのみを駆動すれば、図2の(B)に示す形状の発光パターンが観測される。

【0084】

第1発光ユニット及び第2発光ユニットの各駆動電圧による電氣的駆動は、位置センサー等の情報に基づいて、ドライバー(Integrated Circuit)で制御することができる。

【0085】

《発光ユニットの構成材料》

次いで、発光ユニットを構成する有機EL素子の各構成要素を詳細に説明する。

【0086】

〔基板〕

本発明にかかる有機EL素子に適用可能な基板としては、透明基板が好ましく。例えば、ガラス、プラスチック等の透明材料を挙げることができる。好ましく用いられる透明な透明基板1としては、ガラス、石英、樹脂フィルムを挙げることができる。なかでも樹脂フィルムが好ましい。

【0087】

ガラス材料としては、例えば、シリカガラス、ソーダ石灰シリカガラス、鉛ガラス、ホウケイ酸塩ガラス、無アルカリガラス等が挙げられる。これらのガラス材料の表面には、隣接する層との密着性、耐久性、平滑性の観点から、必要に応じて、研磨等の物理的処理、無機物又は有機物からなる被膜や、これらの被膜を組み合わせたハイブリッド被膜を形成することができる。

【0088】

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)、セルロースアセテートフタレート、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類及びそれらの誘導体、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、アクリル及びポリアリレート類、アトロン(商品名JSR社製)及びアペル(商品名三井化学社製)等のシクロオレフィン系樹脂、等の樹脂フィルムを挙げることができる。

【0089】

基板の表面は、表面活性処理により清浄されていることが好ましい。このような表面活性処理としては、例えば、コロナ処理、プラズマ処理、フレイム処理が挙げられる。

【0090】

本発明に係る有機EL素子においては、上記説明した基板上に、必要に応じて、ガスバリア層を設ける構成であってもよい。

【0091】

ガスバリア層を形成した透明基板としては、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された温度 $25 \pm 0.5^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 $90 \pm 2\% \text{RH}$ における水蒸気透過度が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下であることが好ましく、さらには、JIS K

10

20

30

40

50

7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $1 \times 10^{-3} \text{ ml/m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm}$ (1 atm は、 $1.01325 \times 10^5 \text{ Pa}$ である) 以下であって、温度 $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $90 \pm 2\% \text{ RH}$ における水蒸気透過度が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下であることが好ましい。

【0092】

ガスバリアー層を形成する材料としては、水分や酸素など、有機EL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、窒化ケイ素などの無機物を用いることができる。更に、ガスバリアー層の脆弱性を改良するため、これら無機層と有機材料からなる有機層の積層構造を持たせることがより好ましい。無機層と有機層の積層順については特に制限はないが、両者を交互に複数回積層させることが好ましい。

10

【0093】

〔電極〕

第1発光ユニットにおける基板A1と基板上の電極B1は透明である必要はないが、第1発光ユニットの電極（陰極）D1及び第2発光ユニット以降の電極は透明電極である。このような構成とすることで、発光ユニットで発光する発光パターンを効率よく外部に表示することが可能になる。発光ユニットにおける電極、基板を全て透明とすることもできる。この場合発光パネルの両側から発光パターンを観察することができる。

【0094】

透明電極に用いることのできる材料群としては、通常、有機EL素子の電極形成に使用可能な全ての金属材料を使用することができる。具体的には、アルミニウム、銀、マグネシウム、リチウム、マグネシウム／同混合物、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、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属、ITO（酸化インジウム・スズ（Indium Tin Oxide: ITO））、ZnO、 TiO_2 、 SnO_2 等の酸化物半導体等が挙げられる。

20

【0095】

透明電極が薄膜金属により構成されている場合、電極の厚さとしては、 $5 \sim 30 \text{ nm}$ の範囲内であることが好ましく、更に好ましくは $5 \sim 20 \text{ nm}$ である。

【0096】

本発明においては、更には、薄膜金属により形成する電極が、銀又は銀を主成分とする合金を用いて構成された薄銀電極であることが好ましく、厚さとしては $5 \sim 30 \text{ nm}$ の範囲内であることが好ましく、更に好ましくは $5 \sim 20 \text{ nm}$ である。本発明でいう銀を主成分とする合金とは、合金を構成する金属のうち、銀が占める比率が60質量%以上であることをいい、好ましくは80質量%以上である。

30

【0097】

<下地層>

下地層は、銀又は銀を主成分とする合金を用いて構成された薄銀電極に隣接した層であり、このような下地層は、窒素原子（N）又は硫黄原子（S）を含んだ化合物を用いて構成されている。特に、ルイス塩基を含む層であり、ルイス塩基を有する化合物、すなわち非共有電子対を持っている原子を含む化合物を用いて構成されていることが好ましい。このようなルイス塩基を有する化合物としては、窒素含有化合物又は硫黄含有化合物が例示される。

40

【0098】

一例として下地層は、窒素含有化合物及び硫黄含有化合物の少なくとも一方又は両方を用いて構成された層であり、それぞれ複数種類の化合物を含有していても良い。また、下地層を構成する化合物は、窒素と硫黄の両方を含有した化合物であっても良い。

【0099】

下地層を構成する窒素含有化合物は、窒素原子（N）を含んだ化合物であれば良いが、特に非共有電子対を有する窒素原子を含む有機化合物であることが好ましい。また下地層を構成する硫黄含有化合物は、硫黄（S）を含んだ化合物であれば良いが、特に非共有電

50

子対を有する硫黄原子を含む有機化合物であることが好ましい。

【0100】

また、下地層を構成する窒素含有化合物及び硫黄含有化合物が、銀と安定的に結合する、非共有電子対を有する窒素原子又は硫黄原子を含むとき、この窒素原子又は硫黄原子の非共有電子対を「有効非共有電子対」とした場合、この「有効非共有電子対」の含有率が所定範囲であることが好ましい。

【0101】

ここで「有効非共有電子対」とは、化学構造式上化合物に含有される窒素原子又は硫黄原子が有する非共有電子対のうち、芳香族性に関与していない非共有電子対であることとする。ここでの芳香族性とは、 π 電子を持つ原子が環状に並んだ不飽和環状構造を言い、

10

いわゆる「ヒュッケル則」に従う芳香族性であって、環上の π 電子系に含まれる電子の数が「 $4n+2$ 」（ $n=0$ 、又は自然数）個であることを条件としている。

【0102】

以上のような「有効非共有電子対」は、その非共有電子対を備えた窒素原子又は硫黄原子自体が、芳香環を構成するヘテロ原子であるか否かにかかわらず、窒素原子又は硫黄原子が有する非共有電子対が芳香族性に関与しているか否かによって選択される。例えば、ある窒素原子が芳香環を構成するヘテロ原子であっても、その窒素原子が芳香族性に関与しない非共有電子対を有していれば、その非共有電子対は「有効非共有電子対」の一つとしてカウントされる。これに対して、ある窒素原子が芳香環を構成するヘテロ原子でない場合であっても、その窒素原子の非共有電子対の全てが芳香族性に関与していれば、その窒素原子の非共有電子対は「有効非共有電子対」としてカウントされることはない。硫黄原子についても同様である。尚、各化合物において、上述した「有効非共有電子対」の数 n は、「有効非共有電子対」を有する窒素原子及び硫黄原子の数と一致する。

20

【0103】

特に本実施形態においては、このような化合物の分子量 M に対する「有効非共有電子対」の数 n を、例えば有効非共有電子対含有率（ n/M ）と定義する。そして下地層は、この（ n/M ）が、 $2.0 \times 10^{-3} \leq (n/M)$ となるように選択された化合物を用いて構成されていることが好ましい。また下地層は、以上のように定義される有効非共有電子対含有率（ n/M ）が、 $3.9 \times 10^{-3} \leq (n/M)$ の範囲であればさらに好ましい。

【0104】

また下地層は、有効非共有電子対含有率（ n/M ）が上述した所定範囲である窒素含有化合物又は硫黄含有化合物を用いて構成されていれば良く、このような化合物のみで構成されていても良く、またこのような化合物と他の化合物とを混合して用いて構成されていても良い。他の化合物は、窒素原子又は硫黄原子が含有されていてもいなくても良く、さらに有効非共有電子対含有率（ n/M ）が上述した所定範囲でなくても良い。

30

【0105】

下地層が、複数の化合物を用いて構成されている場合、例えば化合物の混合比に基づき、これらの化合物を混合した混合化合物の分子量 M を求め、この分子量 M に対しての「有効非共有電子対」の合計の数 n を、有効非共有電子対含有率（ n/M ）の平均値として求め、この値が上述した所定範囲であることが好ましい。つまり下地層自体の有効非共有電子対含有率（ n/M ）が所定範囲であることが好ましい。

40

【0106】

また、下地層は、導電性を有する材料で構成されている場合であっても、主たる電極となることはない。このため下地層は、電極として必要な厚さを備えている必要はなく、下地層を備えた透明電極が用いられる電子デバイス中における透明電極の配置状態によって、適切に設定された厚さを有していれば良い。

【0107】

次に、下地層を構成する化合物の詳細を、窒素含有化合物（1）、窒素含有化合物（2）、窒素含有化合物（3）、硫黄含有化合物、及び下地層の成膜方法の順に説明する。

【0108】

50

〔窒素含有化合物（１）〕

下地層を構成する窒素含有化合物は、窒素原子（N）を含んだ化合物であれば良い。特に、非共有電子対を有する窒素原子を含む有機化合物であり、次のような化合物であることが好ましい。

【０１０９】

以下に、窒素含有化合物を構成する化合物として、上述した有効非共有電子対含有率（ n/M ）が、 $2.0 \times 10^{-3} \leq (n/M)$ となる化合物を用いて下地層を構成することで、「銀の凝集を抑える」効果が確実に得られる下地層を設けることが可能になる。このような下地層上には、 9 nm といった極薄膜でありながらもシート抵抗の測定が可能な銀の透明電極を形成することが可能である。

10

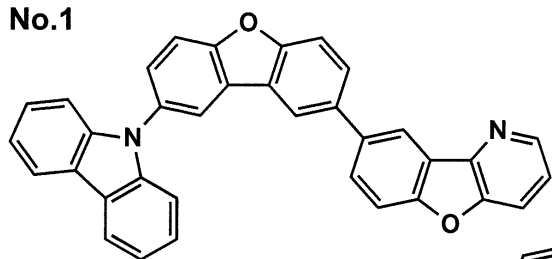
【０１１０】

以下に、下地層を構成する窒素含有化合物として、上述した有効非共有電子対含有率（ n/M ）が $2.0 \times 10^{-3} \leq (n/M)$ を満たす窒素含有化合物の具体例（例示化合物 No. １～No. ４５）を示す。また、下記表１には、これらの窒素含有化合物 No. １～No. ４５の分子量（ M ）、〔有効非共有電子対〕の個数（ n ）、及び有効非共有電子対含有率（ n/M ）を示す。下記窒素含有化合物 No. ３３の銅フタロシアニンにおいては、窒素原子が有する非共有電子対のうち銅に配位していない非共有電子対が〔有効非共有電子対〕としてカウントされる。

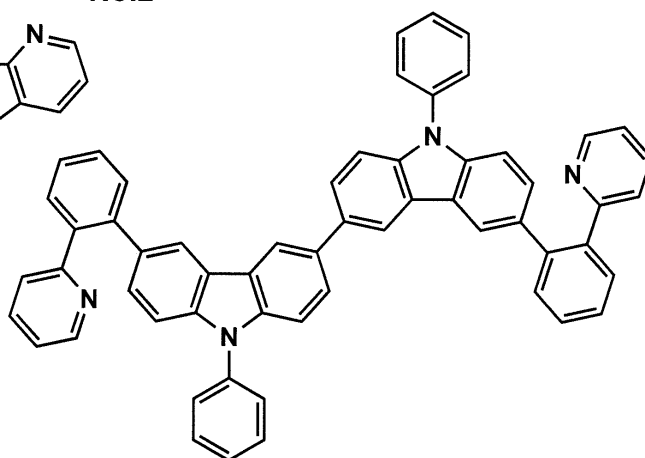
【０１１１】

【化 1】

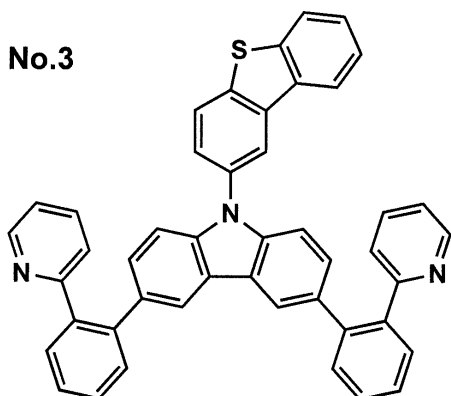
No.1



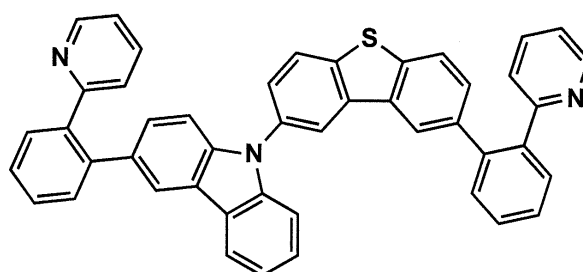
No.2



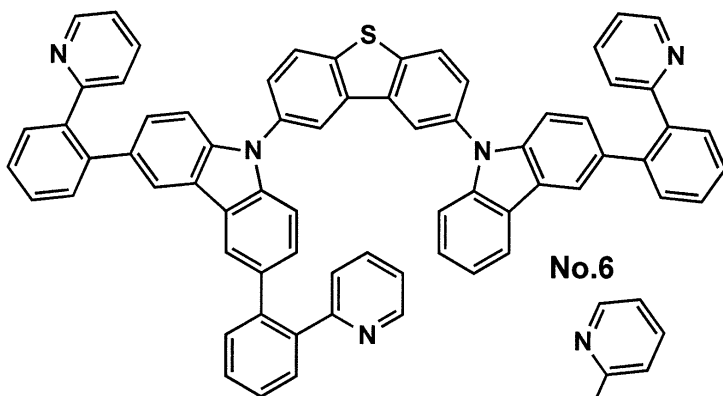
No.3



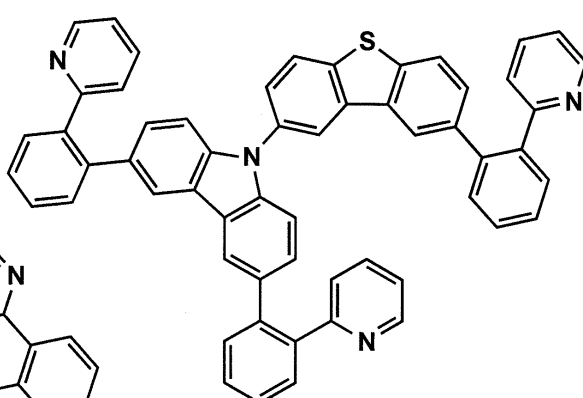
No.4



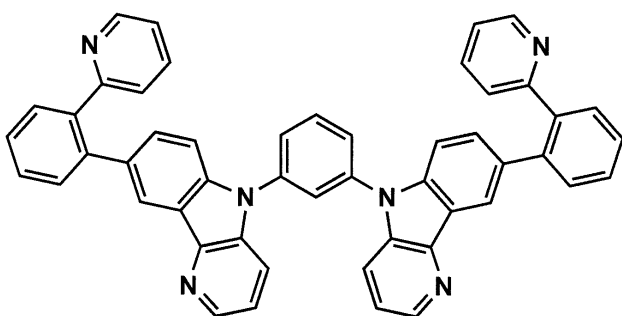
No.5



No.6



No.7



【 0 1 1 2 】

10

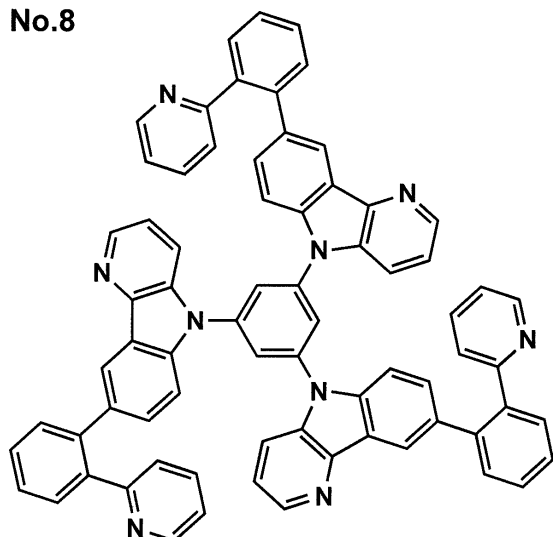
20

30

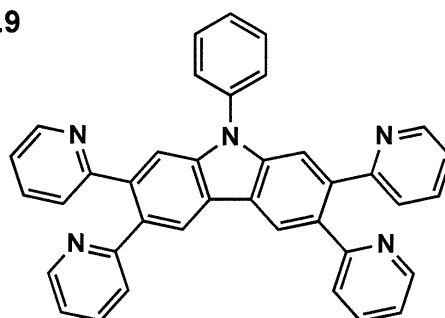
40

【化 2】

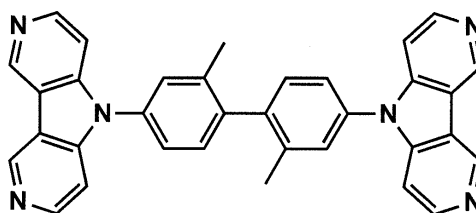
No.8



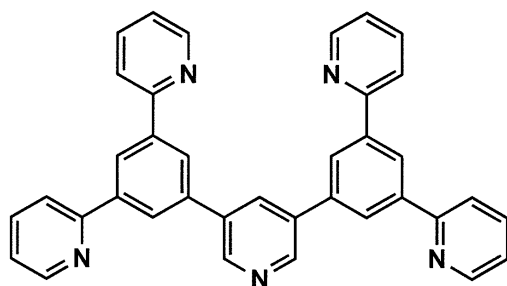
No.9



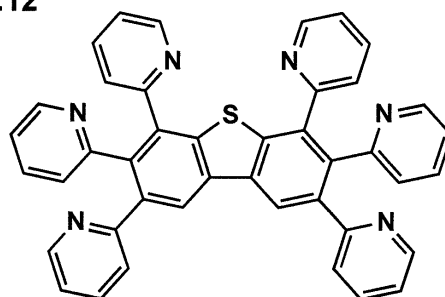
No.10



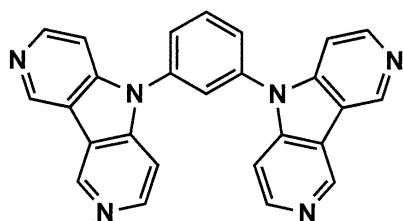
No.11



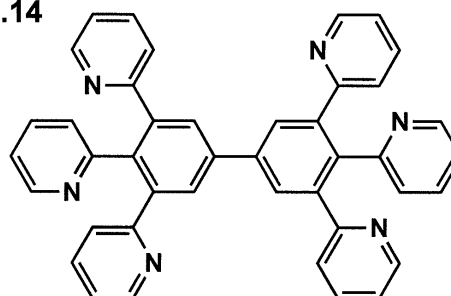
No.12



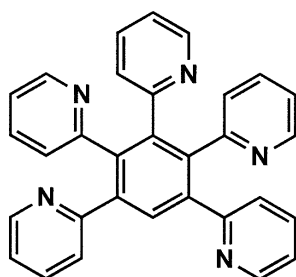
No.13



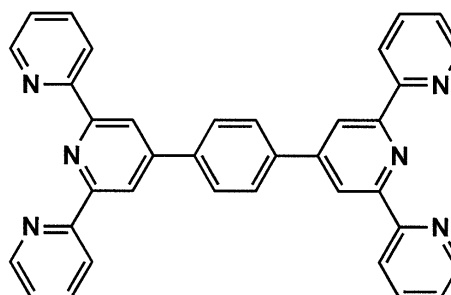
No.14



No.15



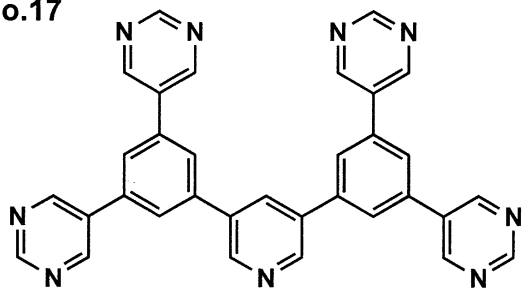
No.16



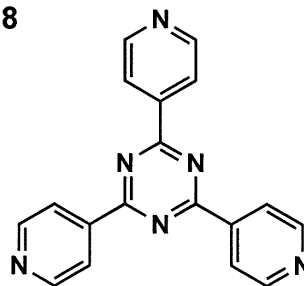
【 0 1 1 3 】

【化 3】

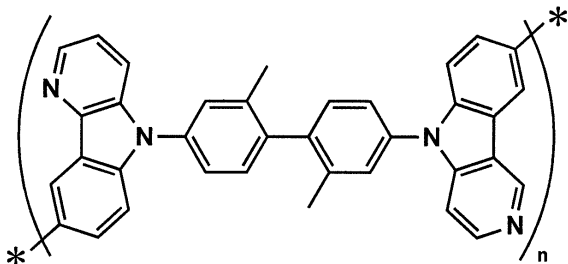
No.17



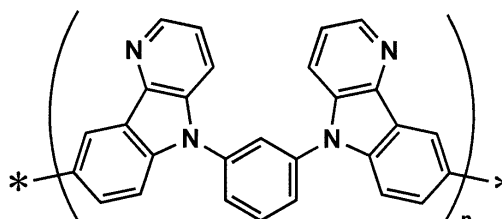
No.18



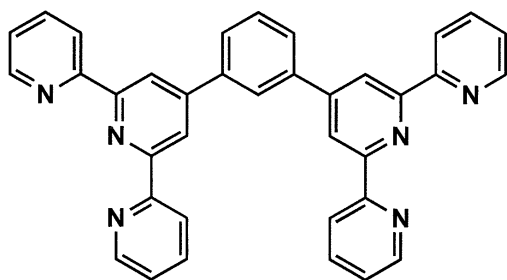
No.19



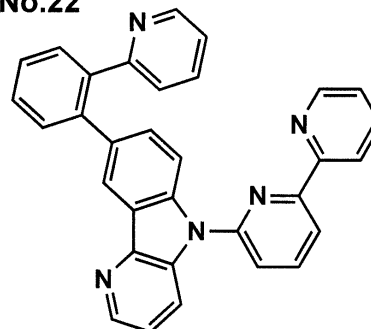
No.20



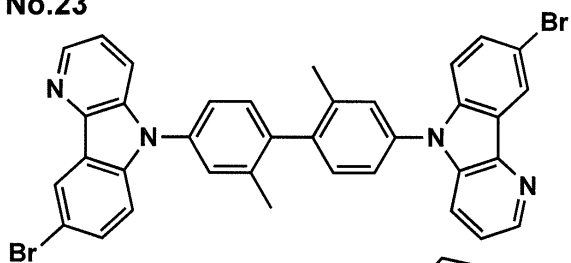
No.21



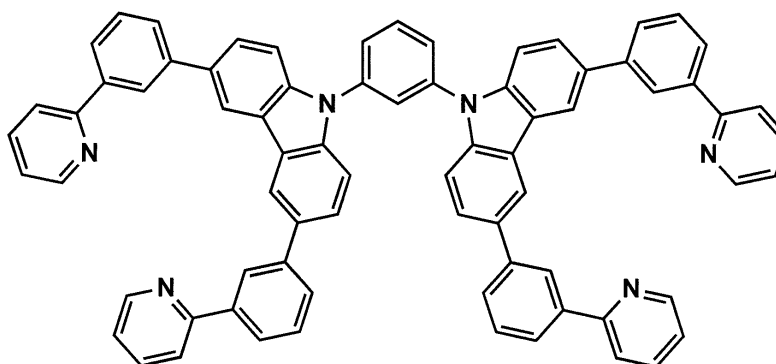
No.22



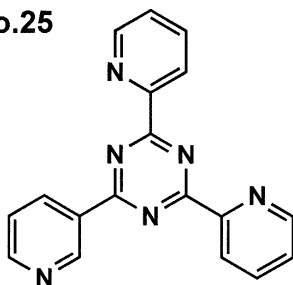
No.23



No.24



No.25



【 0 1 1 4 】

10

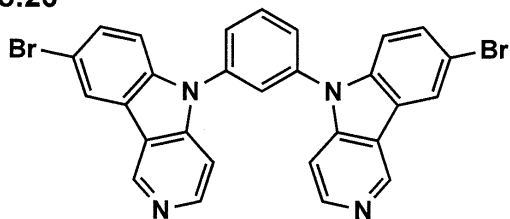
20

30

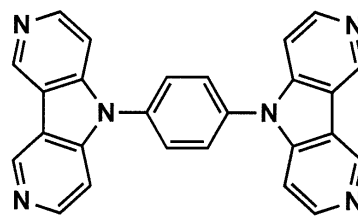
40

【化 4】

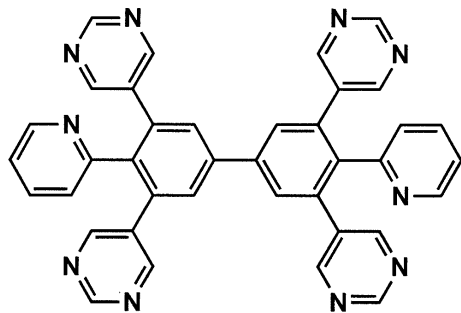
No.26



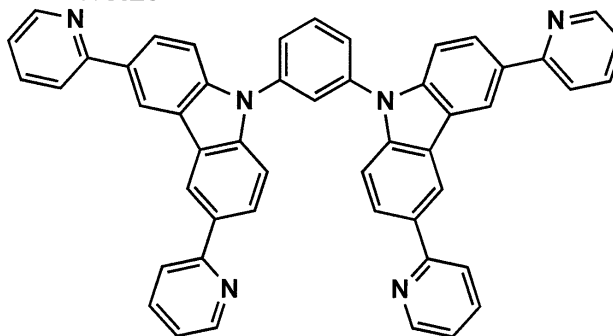
No.27



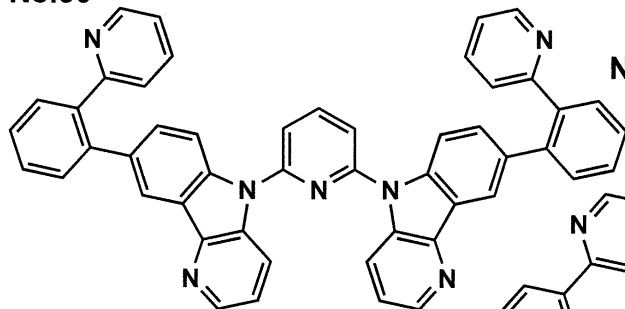
No.28



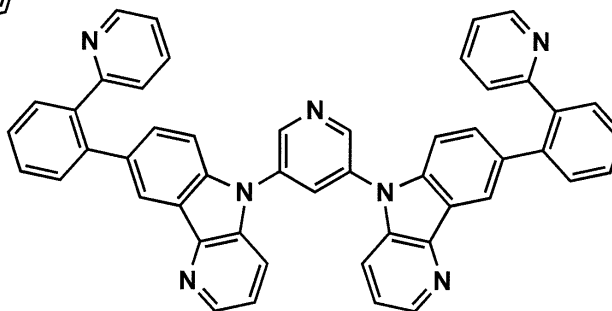
No.29



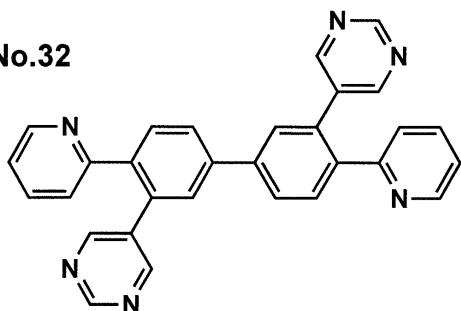
No.30



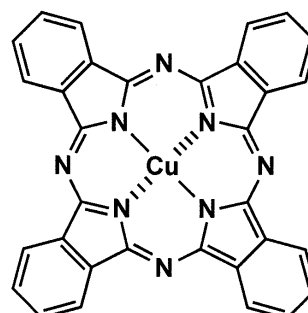
No.31



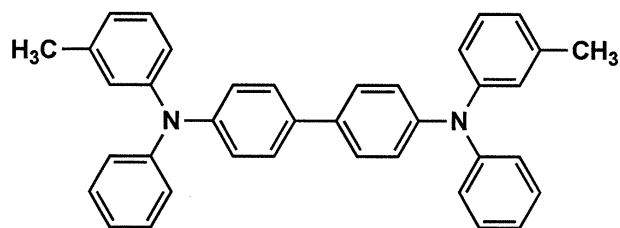
No.32



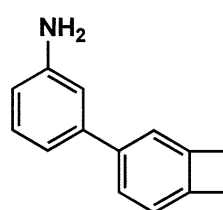
No.33



No.34



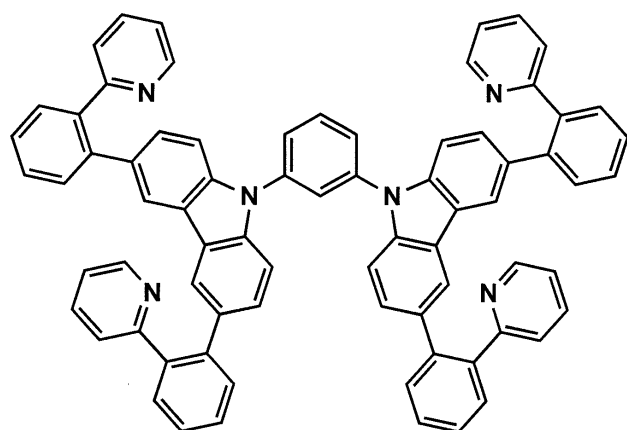
No.35



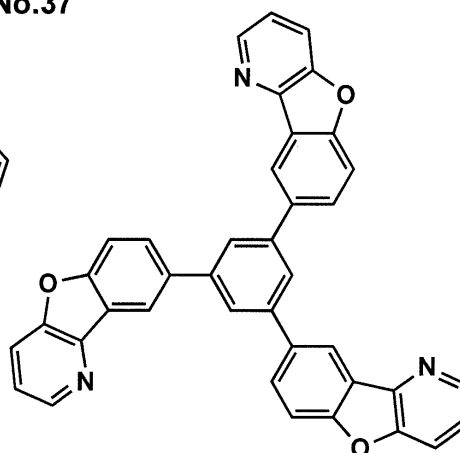
【 0 1 1 5 】

【化 5】

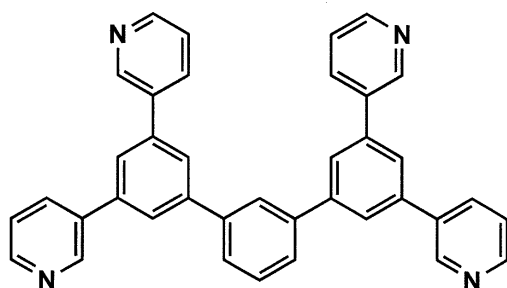
No.36



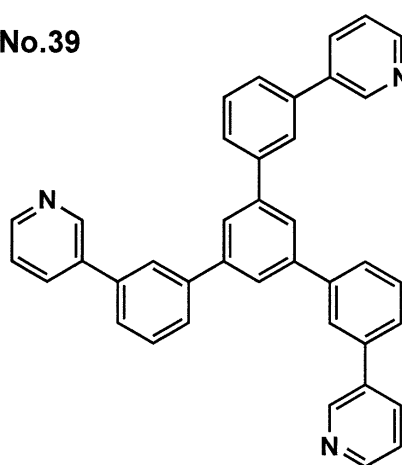
No.37



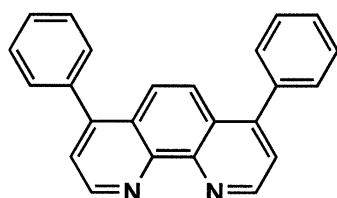
No.38



No.39



No.40



【 0 1 1 6 】

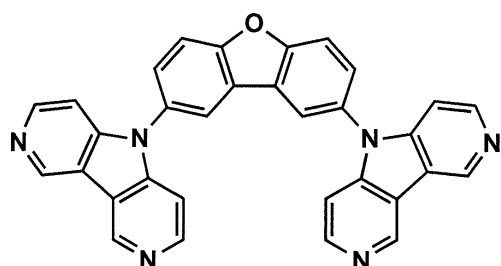
10

20

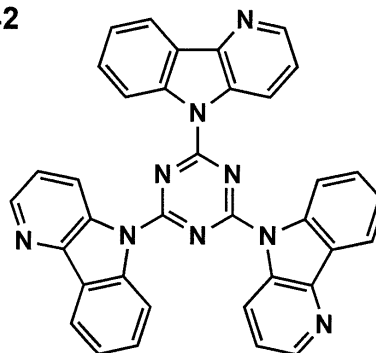
30

【化 6】

No.41

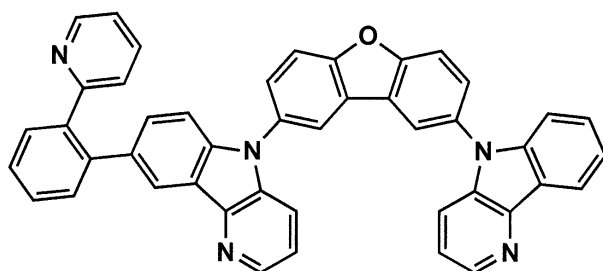


No.42



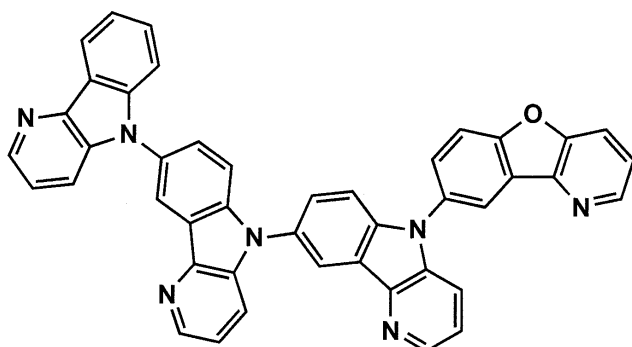
10

No.43

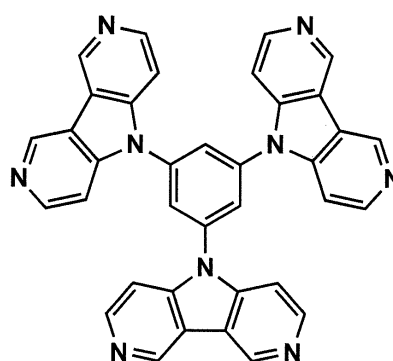


20

No.44



No.45



30

【 0 1 1 7 】

【表 1】

例示化合物 番号	有効非共有電子対 の個数 (n)	分子量 (M)	有効非共有電子対 含有率 (n/M)
No. 1	1	500.55	0.0020
No. 2	2	790.95	0.0025
No. 3	2	655.81	0.0030
No. 4	2	655.81	0.0030
No. 5	3	974.18	0.0031
No. 6	3	808.99	0.0037
No. 7	4	716.83	0.0056
No. 8	6	1036.19	0.0058
No. 9	4	551.64	0.0073
No. 10	4	516.60	0.0077
No. 11	5	539.63	0.0093
No. 12	6	646.76	0.0093
No. 13	4	412.45	0.0097
No. 14	6	616.71	0.0097
No. 15	5	463.53	0.0108
No. 16	6	540.62	0.0111
No. 17	9	543.58	0.0166
No. 18	6	312.33	0.0192
No. 19	2	512.60	0.0039
No. 20	2	408.45	0.0049
No. 21	6	540.62	0.0111
No. 22	4	475.54	0.0084
No. 23	2	672.41	0.0030
No. 24	4	1021.21	0.0039
No. 25	6	312.33	0.0192
No. 26	2	568.26	0.0035
No. 27	4	412.45	0.0097
No. 28	10	620.66	0.0161
No. 29	4	716.83	0.0056
No. 30	5	717.82	0.0070
No. 31	5	717.82	0.0070
No. 32	6	464.52	0.0129
No. 33	4	576.10	0.0069
No. 34	2	516.67	0.0039
No. 35	1	195.26	0.0051
No. 36	4	1021.21	0.0039
No. 37	3	579.60	0.0052
No. 38	4	538.64	0.0074
No. 39	3	537.65	0.0056
No. 40	2	332.40	0.0060
No. 41	4	502.15	0.0080
No. 42	6	579.19	0.0104
No. 43	3	653.22	0.0046
No. 44	4	667.21	0.0060
No. 45	6	579.19	0.0104

【0118】

〔窒素含有化合物（2）〕

また下地層を構成する窒素含有化合物としては、以上のような有効非共有電子対含有率 (n/M) が上述した所定範囲である窒素含有化合物（1）の他、この下地層を備えた透

10

20

30

40

50

明電極が適用される電子デバイスごとに必要とされる性質を有する化合物が用いられる。例えば、この透明電極が、有機電界発光素子の電極として用いられる場合、その成膜性の観点から、下地層を構成する窒素含有化合物としては、以降に説明する一般式（１）～（６）他で表される窒素含有化合物（２）が用いられる。

【０１１９】

これらの一般式（１）～（６）他で示される窒素含有化合物の中には、上述した有効非共有電子対含有率（ n/M ）の範囲に当てはまる窒素含有化合物も含まれ、このような窒素含有化合物であれば単独で下地層を構成する化合物として用いることができる（上記表１参照）。一方、下記一般式（１）～（６）他で示される化合物が、上述した有効非共有電子対含有率（ n/M ）の範囲に当てはまらない窒素含有化合物であれば、有効非共有電子対含有率（ n/M ）が上述した範囲の窒素含有化合物と混合することで下地層を構成する化合物として用いることが好ましい。

【０１２０】

【化７】

一般式(1)



【０１２１】

上記一般式（１）中におけるX11は、 $-N(R11)-$ 又は $-O-$ を表す。また一般式（１）中におけるE101～E108は、各々 $-C(R12)=$ 又は $-N=$ を表す。E101～E108のうち少なくとも1つは $-N=$ である。上記R11及びR12は、それぞれが水素原子（H）又は置換基を表す。

【０１２２】

この置換基の例としては、アルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等）、シクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（例えば、ビニル基、アリル基等）、アルキニル基（例えば、エチニル基、プロパルギル基等）、芳香族炭化水素基（芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ビフェニル基）、芳香族複素環基（例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（上記カルボリニル基のカルボリン環を構成する任意の炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、フタラジニル基等）、複素環基（例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホルル基、オキサゾリジル基等）、アルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等）、シクロアルコキシ基（例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等）、アリールオキシ基（例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等）、アルキルチオ基（例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等）、シクロアルキルチオ基（例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等）、アリールチオ基（例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等）、アルコキシカルボニル基（例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等）、アリールオキシカルボニル基（

例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等）、スルファモイル基（例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等）、アシル基（例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等）、アシルオキシ基（例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等）、アミド基（例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等）、カルバモイル基（例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等）、ウレイド基（例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基、ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等）、スルフィニル基（例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等）、アルキルスルホニル基（例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等）、アリールスルホニル基又はヘテロアリールスルホニル基（例えば、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等）、アミノ基（例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基、ピペリジル基（ピペリジニル基ともいう）、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジニル基等）、ハロゲン原子（例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等）、フッ化炭化水素基（例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等）、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基（例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等）、リン酸エステル基（例えば、ジヘキシルホスホリル基等）、亜リン酸エステル基（例えばジフェニルホスフィニル基等）、ホスホノ基等が挙げられる。

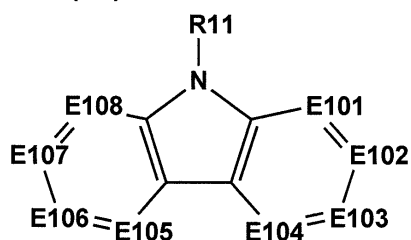
【0123】

これらの置換基の一部は、上記の置換基によってさらに置換されていてもよい。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

【0124】

【化 8】

一般式(1a)



【0125】

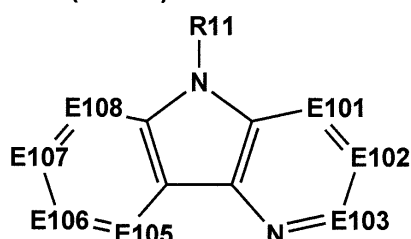
10

上記一般式(1a)で示される化合物は、上記一般式(1)で示される化合物の一形態であり、一般式(1)におけるX11を-N(R11)-とした化合物である。

【0126】

【化 9】

一般式(1a-1)



20

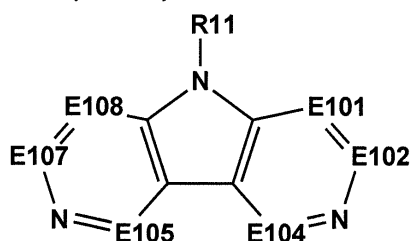
【0127】

上記一般式(1a-1)で示される化合物は、上記一般式(1a)で示される化合物の一形態であり、一般式(1a)におけるE104を-N=とした化合物である。

【0128】

【化 10】

一般式(1a-2)



30

【0129】

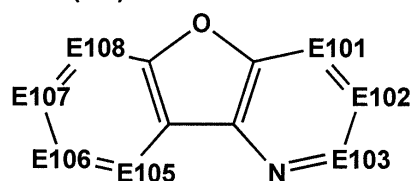
上記一般式(1a-2)で示される化合物は、上記一般式(1a)で示される化合物の他の一形態であり、一般式(1a)におけるE103及びE106を-N=とした化合物である。

【0130】

40

【化 11】

一般式(1b)



【0131】

上記一般式(1b)で示される化合物は、上記一般式(1)で示される化合物の他の一

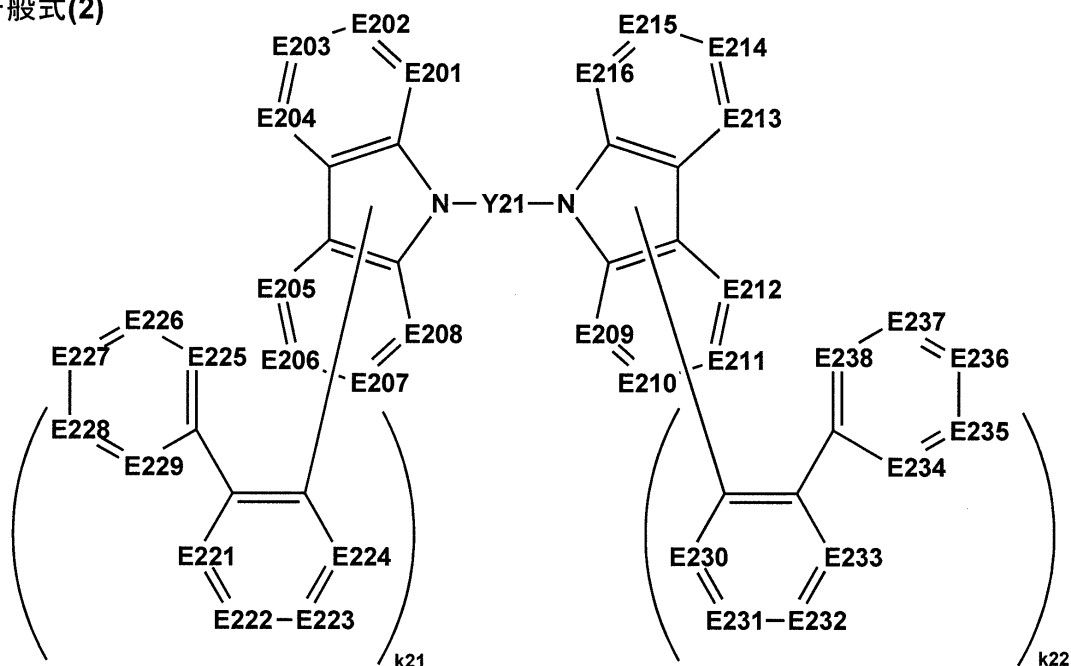
50

形態であり、一般式（１）におけるX 1 1を－O－とし、E 1 0 4を－N＝とした化合物である。

【 0 1 3 2 】

【化 1 2 】

一般式(2)



【 0 1 3 3 】

上記一般式（２）は、一般式（１）の一形態でもある。上記一般式（２）の式中、Y 2 1は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基又はそれらの組み合わせからなる２価の連結基を表す。E 2 0 1～E 2 1 6、E 2 2 1～E 2 3 8は、各々－C（R 2 1）＝又は－N＝を表す。R 2 1は水素原子（H）又は置換基を表す。ただし、E 2 2 1～E 2 2 9の少なくとも１つ、及びE 2 3 0～E 2 3 8の少なくとも１つは－N＝を表す。k 2 1及びk 2 2は０～４の整数を表すが、k 2 1＋k 2 2は２以上の整数である。

【 0 1 3 4 】

一般式（２）において、Y 2 1で表されるアリーレン基としては、例えば、o－フェニレン基、p－フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、ナフタセンジイル基、ピレンジイル基、ナフチルナフタレンジイル基、ビフェニルジイル基（例えば、[1, 1'－ビフェニル]－4, 4'－ジイル基、3, 3'－ビフェニルジイル基、3, 6－ビフェニルジイル基等）、テルフェニルジイル基、クアテルフェニルジイル基、キンクフェニルジイル基、セキシフェニルジイル基、セプチフェニルジイル基、オクチフェニルジイル基、ノビフェニルジイル基、デシフェニルジイル基等が例示される。

【 0 1 3 5 】

また一般式（２）において、Y 2 1で表されるヘテロアリーレン基としては、例えば、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環（モノアザカルボリン環ともいい、カルボリン環を構成する炭素原子のひとつが窒素原子で置き換わった構成の環構成を示す）、トリアゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピラジン環、キノキサリン環、チオフェン環、オキサジアゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、インドール環からなる群から導出される２価の基等が例示される。

Y 2 1で表されるアリーレン基、ヘテロアリーレン基又はそれらの組み合わせからなる２価の連結基の好ましい態様としては、ヘテロアリーレン基の中でも、３環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基を含むことが好ましく、また、当該３環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基としては、ジベンゾフラン環から導出される基又はジベンゾチオフェン環から導出される基が好ましい。

【0136】

一般式(2)において、E201～E216、E221～E238で各々表される-C(R21)=のR21が置換基である場合、その置換基の例としては、一般式(1)のR11, R12として例示した置換基が同様に適用される。

【0137】

一般式(2)において、E201～E208のうちの6つ以上、及びE209～E216のうちの6つ以上が、各々-C(R21)=で表されることが好ましい。

【0138】

一般式(2)において、E225～E229の少なくとも1つ、及びE234～E238の少なくとも1つが-N=を表すことが好ましい。

10

【0139】

さらには、一般式(2)において、E225～E229のいずれか1つ、及びE234～E238のいずれか1つが-N=を表すことが好ましい。

【0140】

また、一般式(2)において、E221～E224及びE230～E233が、各々-C(R21)=で表されることが好ましい態様として挙げられる。

【0141】

さらに、一般式(2)で表される化合物において、E203が-C(R21)=で表され、かつR21が連結部位を表すことが好ましく、さらに、E211も同時に-C(R21)=で表され、かつR21が連結部位を表すことが好ましい。

20

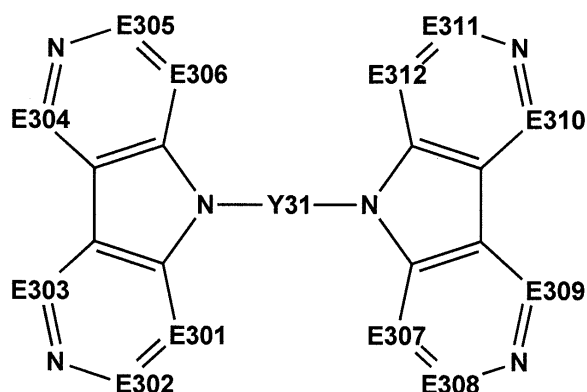
【0142】

さらに、E225及びE234が-N=で表されることが好ましく、E221～E224及びE230～E233が、各々-C(R21)=で表されることが好ましい。

【0143】

【化13】

一般式(3)



30

【0144】

上記一般式(3)は、一般式(1a-2)の一形態でもある。上記一般式(3)の式中、E301～E312は、各々-C(R31)=を表し、R31は水素原子(H)又は置換基を表す。また、Y31は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基又はそれらの組み合わせからなる2価の連結基を表す。

40

【0145】

上記一般式(3)において、E301～E312で各々表される-C(R31)=のR31が置換基である場合、その置換基の例としては、一般式(1)のR11, R12として例示した置換基が同様に適用される。

【0146】

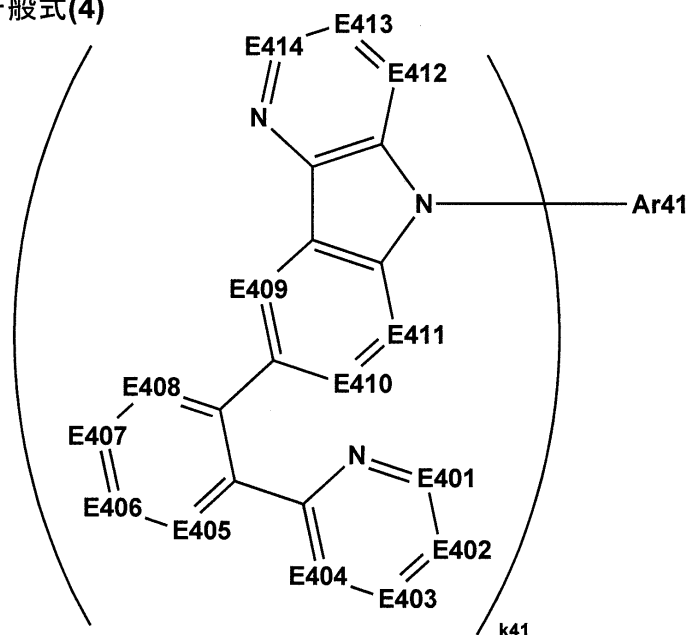
また一般式(3)において、Y31で表されるアリーレン基、ヘテロアリーレン基又はそれらの組み合わせからなる2価の連結基の好ましい態様としては、一般式(2)のY21と同様のものが挙げられる。

50

【0147】

【化14】

一般式(4)



10

【0148】

上記一般式(4)は、一般式(1a-1)の一形態でもある。上記一般式(4)の式中、E401～E414は、各々-C(R41)=を表し、R41は水素原子(H)又は置換基を表す。またAr41は、置換あるいは無置換の、芳香族炭化水素環あるいは芳香族複素環を表す。さらにk41は3以上の整数を表す。

【0149】

上記一般式(4)において、E401～E414で各々表される-C(R41)=のR41が置換基である場合、その置換基の例としては、一般式(1)のR11、R12として例示した置換基が同様に適用される。

【0150】

また一般式(4)において、Ar41が芳香族炭化水素環を表す場合、この芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナфтаセン環、トリフェニレン環、o-テルフェニル環、m-テルフェニル環、p-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナфтаセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。これらの環は、さらに一般式(1)のR11、R12として例示した置換基を有しても良い。

30

【0151】

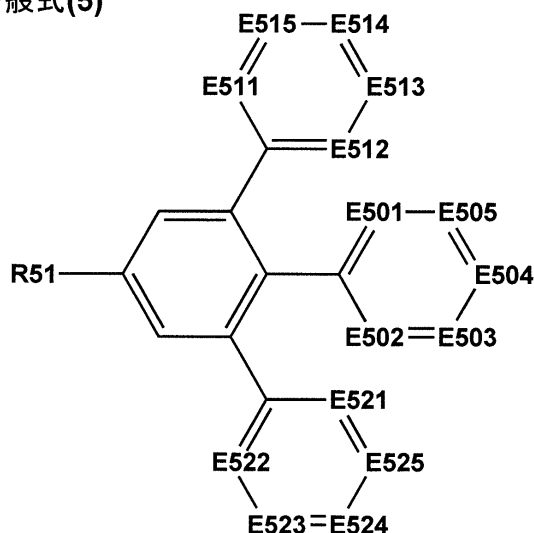
また一般式(4)において、Ar41が芳香族複素環を表す場合、この芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環等が挙げられる。尚、アザカルバゾール環とは、カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が1つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。これらの環は、さらに一般式(1)において、R11、R12として例示した置換基を有しても良い。

40

【0152】

【化 1 5】

一般式(5)



10

【0 1 5 3】

上記一般式(5)の式中、R51は置換基を表す。E501、E502、E511～E515、E521～E525は、各々-C(R52)=又は-N=を表す。E503～E505は、各々-C(R52)=を表す。R52は、水素原子(H)又は置換基を表す。E501及びE502のうちの少なくとも1つは-N=であり、E511～E515のうちの少なくとも1つは-N=であり、E521～E525のうちの少なくとも1つは-N=である。

20

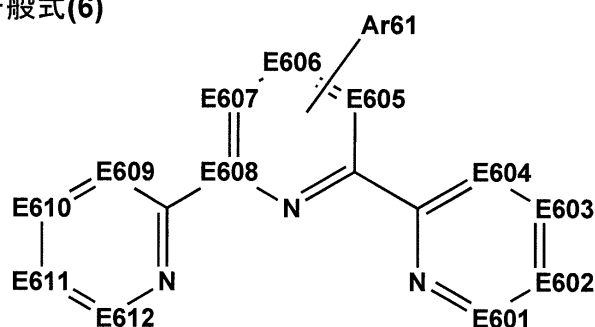
【0 1 5 4】

上記一般式(5)において、R51が表す置換基及びR52が置換基を表す場合、これらの置換基の例としては、一般式(1)のR11、R12として例示した置換基が同様に適用される。

【0 1 5 5】

【化 1 6】

一般式(6)



30

【0 1 5 6】

上記一般式(6)の式中、E601～E612は、各々-C(R61)=又は-N=を表し、R61は水素原子(H)又は置換基を表す。またAr61は、置換あるいは無置換の、芳香族炭化水素環あるいは芳香族複素環を表す。

40

【0 1 5 7】

上記一般式(6)において、E601～E612で各々表される-C(R61)=のR61が置換基である場合、その置換基の例としては、一般式(1)のR11、R12として例示した置換基が同様に適用される。

【0 1 5 8】

また一般式(6)において、Ar61が表す、置換あるいは無置換の、芳香族炭化水素環あるいは芳香族複素環は、一般式(4)のAr41と同様のものが挙げられる。

50

【0159】

[窒素含有化合物(3)]

また下地層を構成するさらに他の窒素含有化合物(3)として、以上のような一般式(1)～(6)やその他の一般式で表される化合物の他、下記に具体例を示す化合物1～134が例示される。これらの化合物は、電子輸送性又は電子注入性を備えた材料である。

【0160】

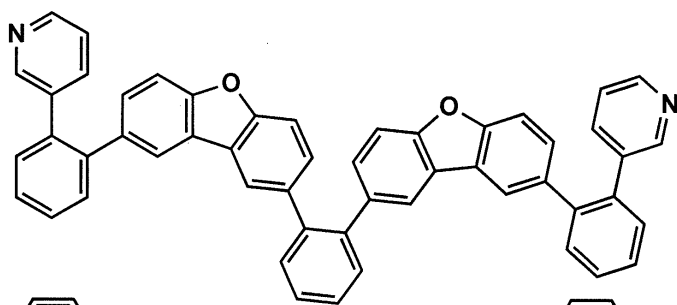
尚、これらの化合物1～134の中には、上述した有効非共有電子対含有率(n/M)の範囲に当てはまる化合物も含まれ、このような化合物であれば単独で下地層を構成する化合物として用いることができる。さらに、これらの化合物1～134の中には、上述した一般式(1)～(6)やその他の一般式に当てはまる化合物もある。

10

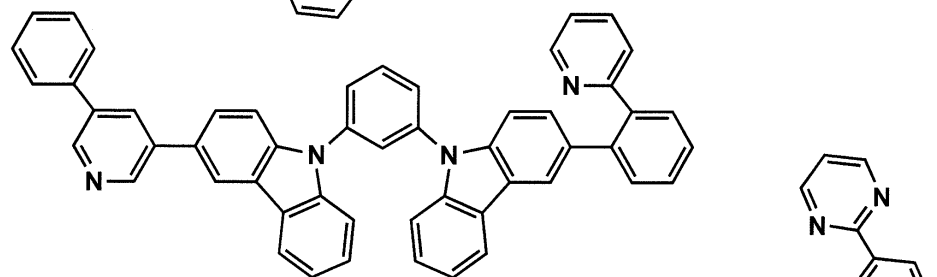
【0161】

【化 1 7】

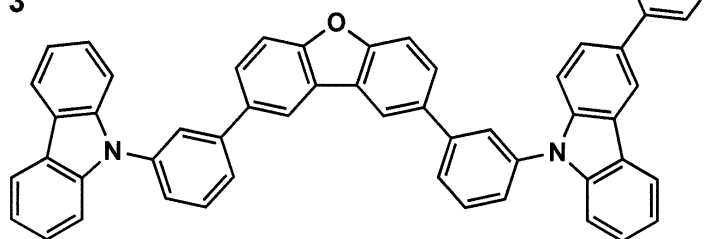
1



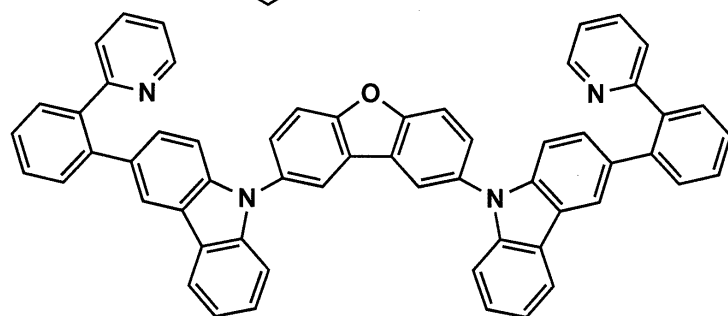
2



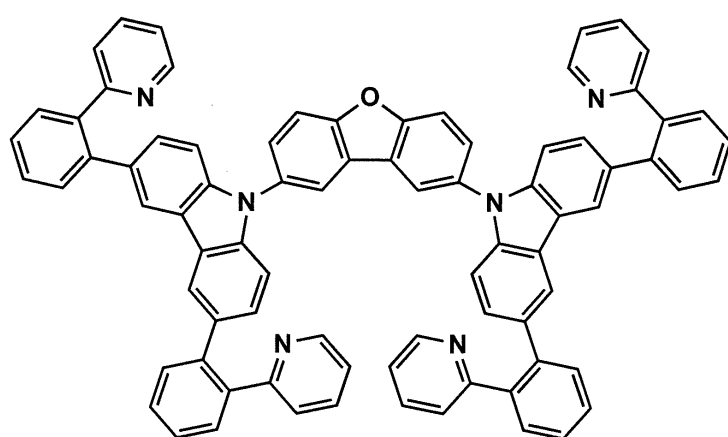
3



4



5



【 0 1 6 2 】

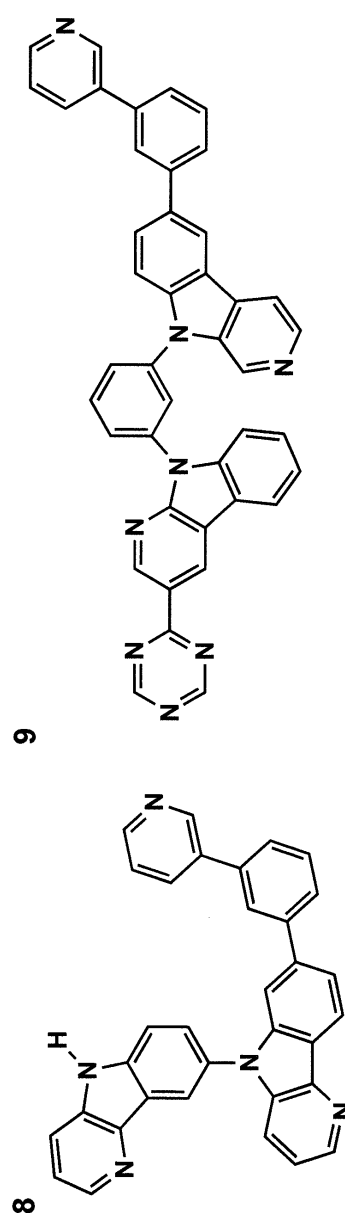
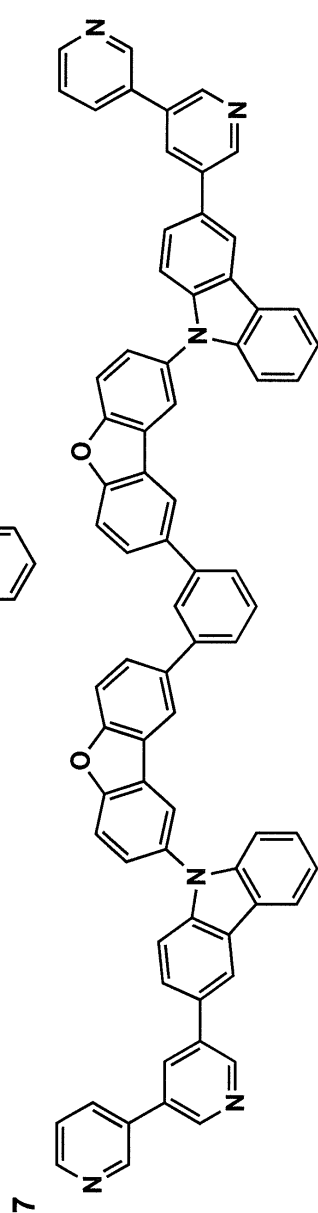
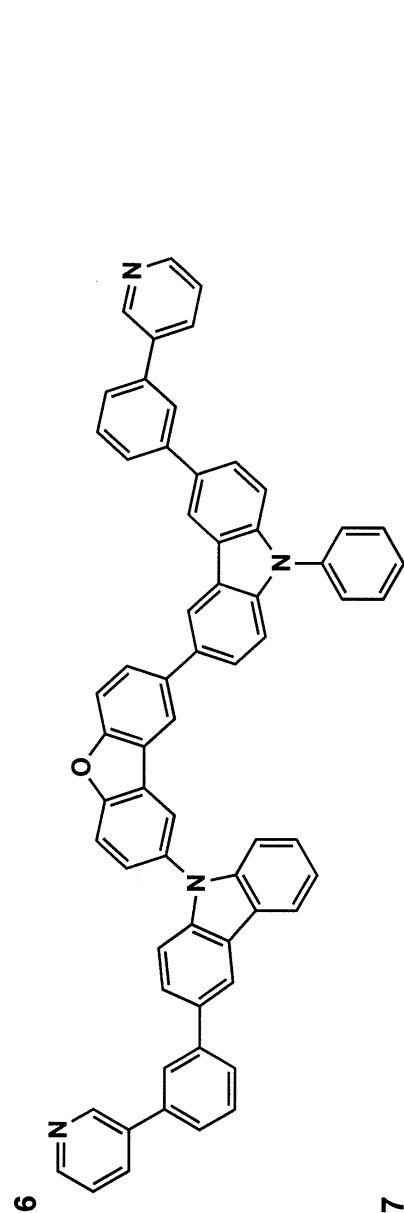
10

20

30

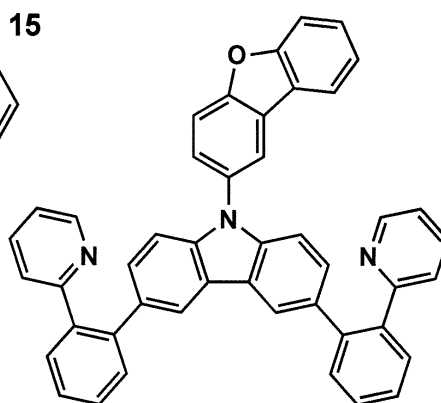
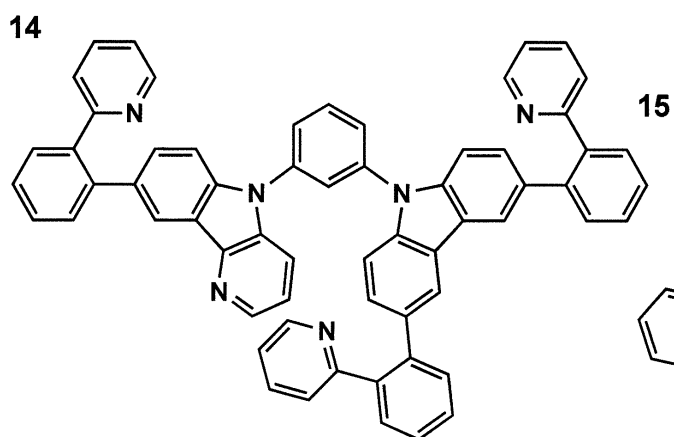
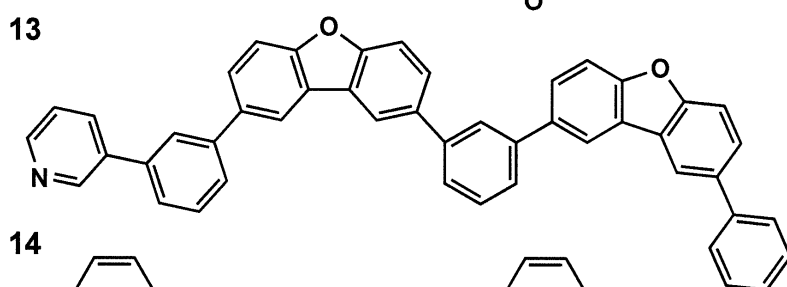
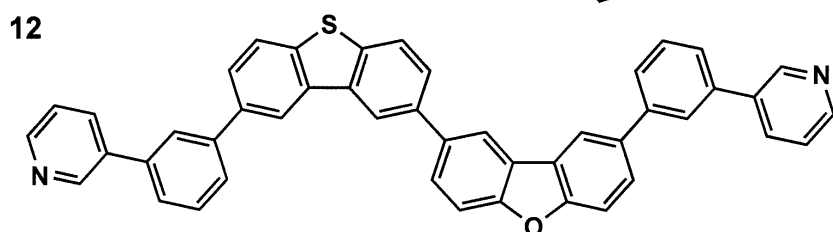
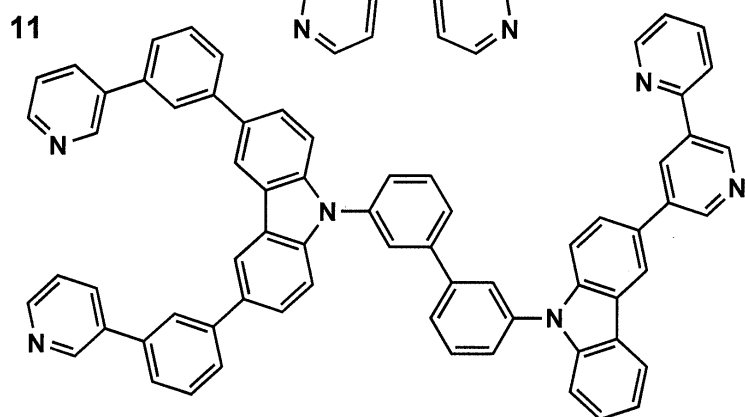
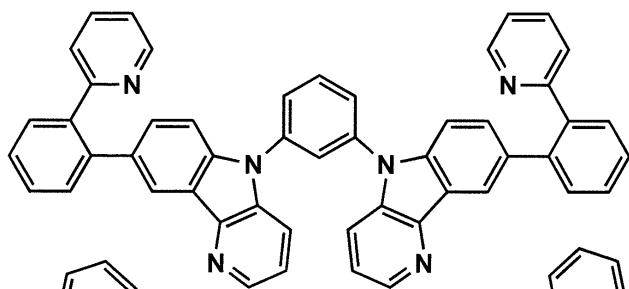
40

【 0 1 6 3 】



30

10



【 0 1 6 4 】

10

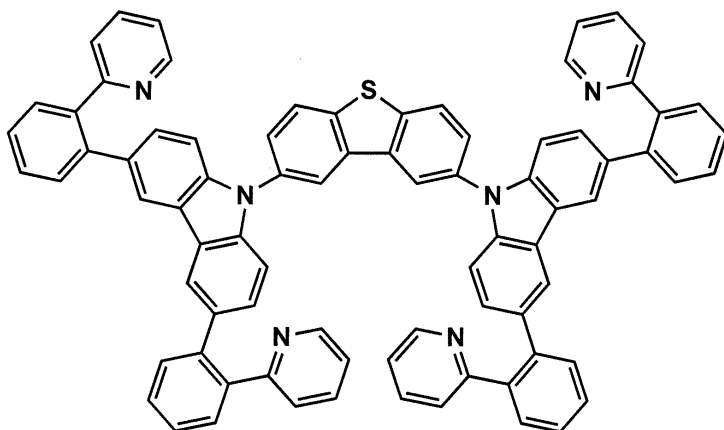
20

30

40

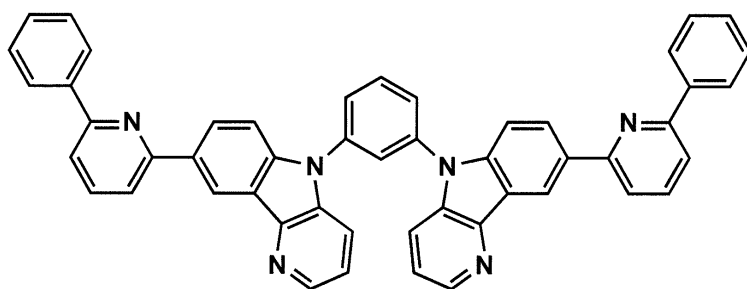
【化 2 0】

16



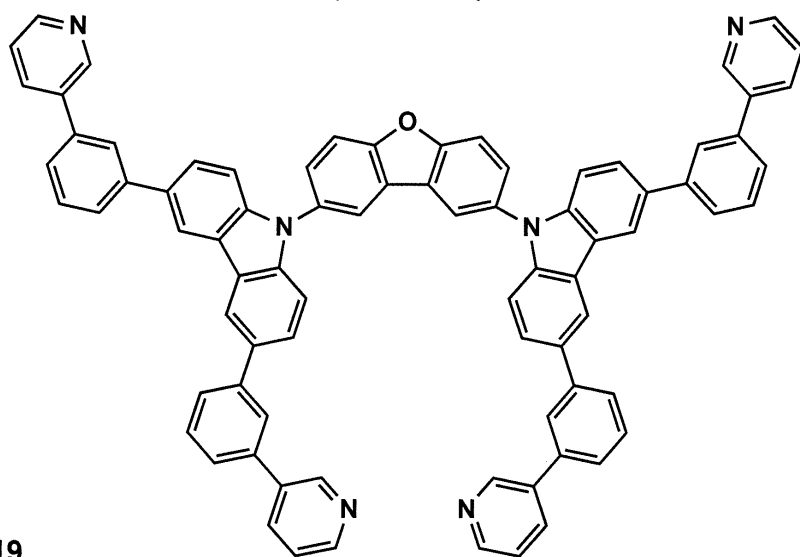
10

17



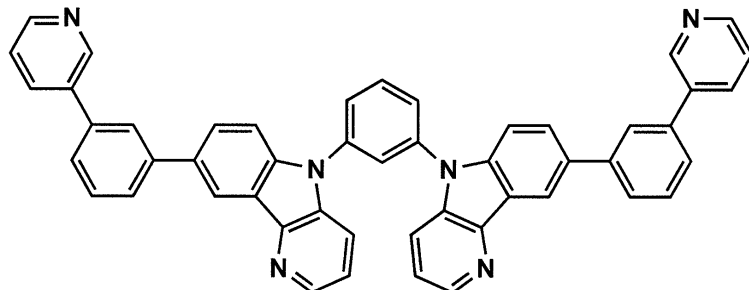
20

18



30

19

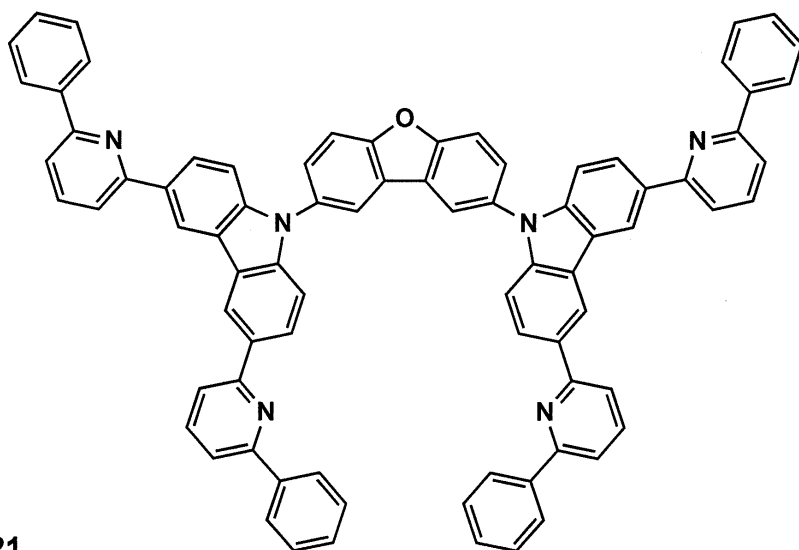


40

【0 1 6 5】

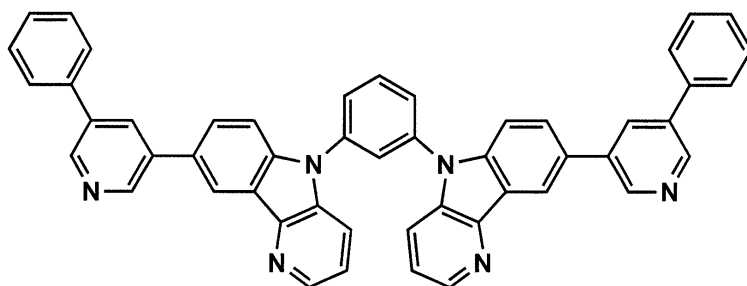
【化 2 1】

20



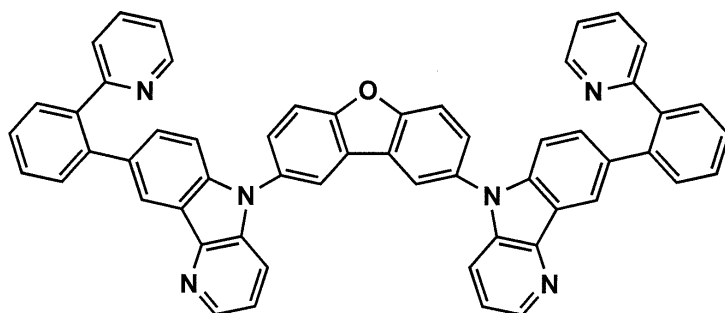
10

21



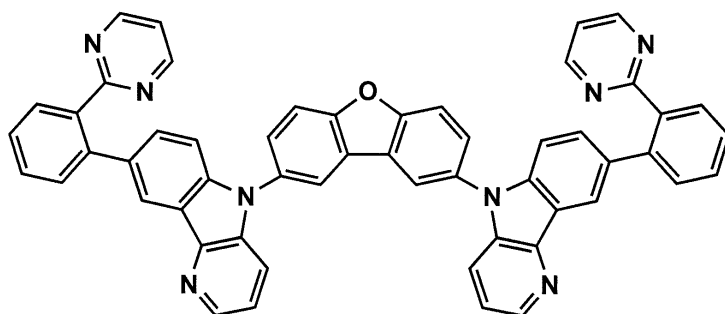
20

22



30

23

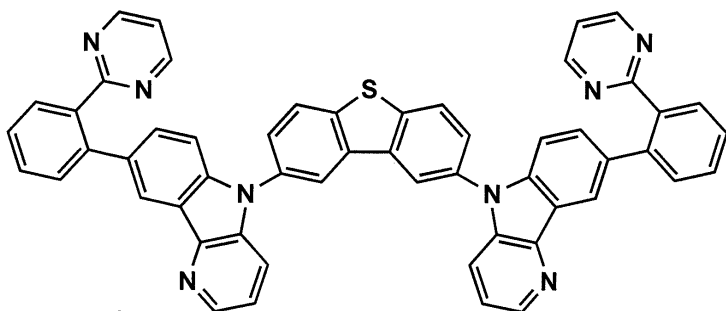


40

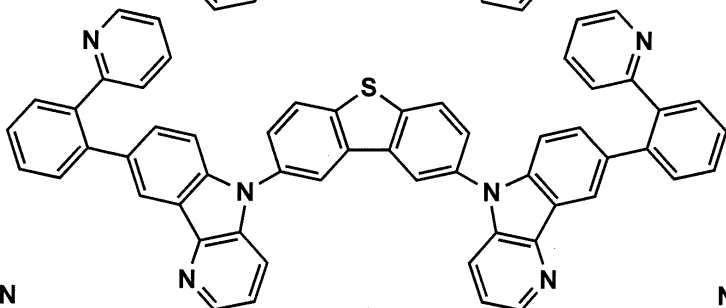
【 0 1 6 6】

【化 2 2】

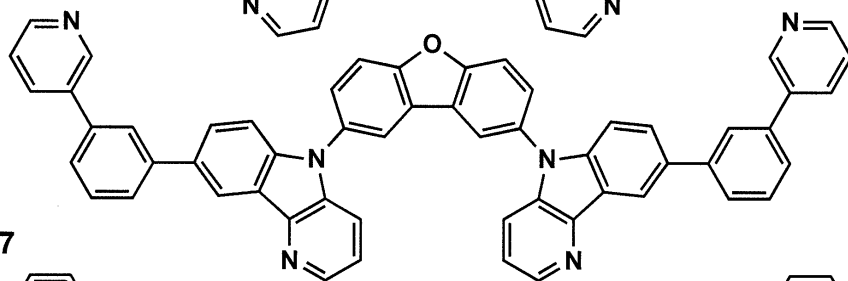
24



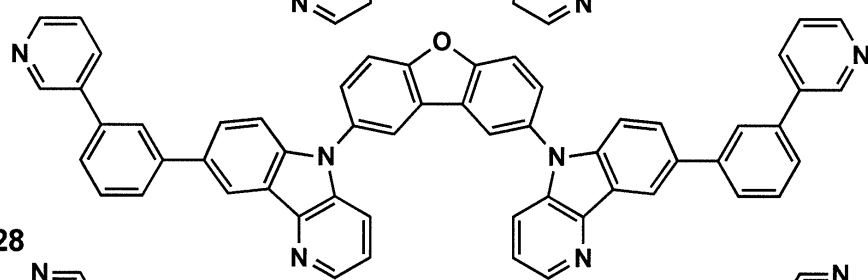
25



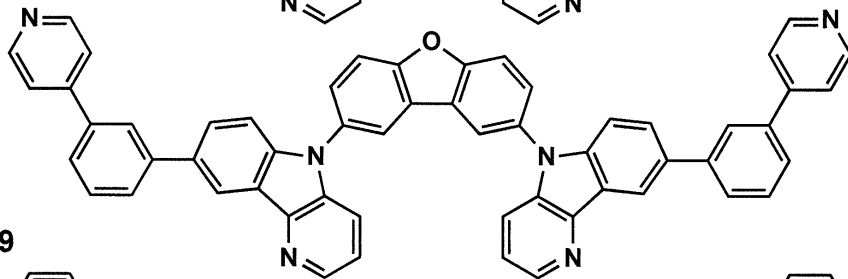
26



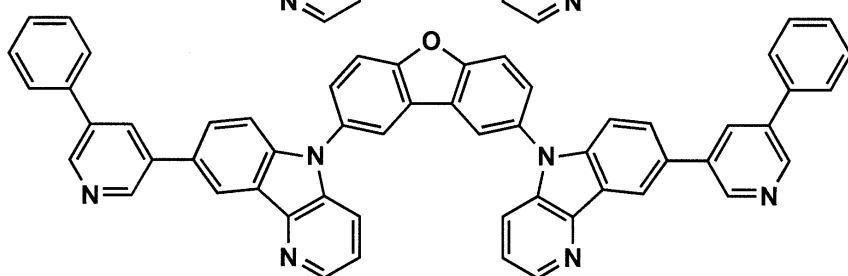
27



28



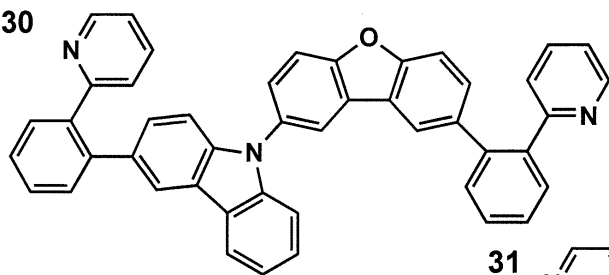
29



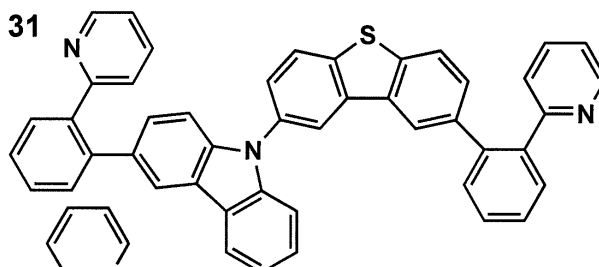
【0 1 6 7】

【化 2 3】

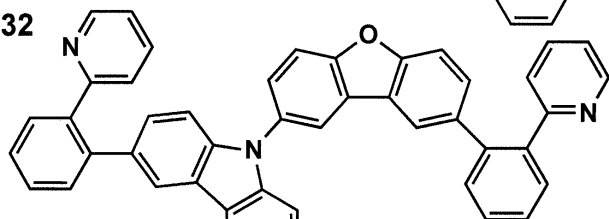
30



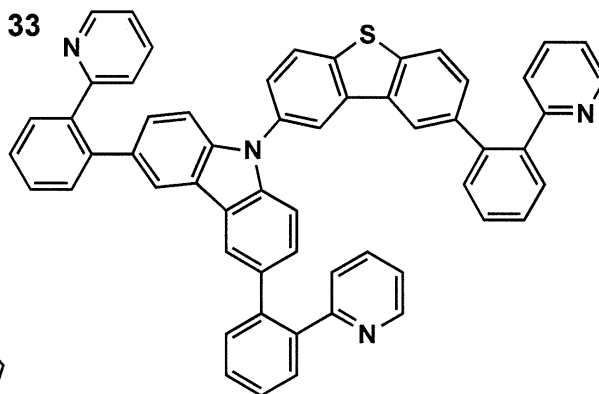
31



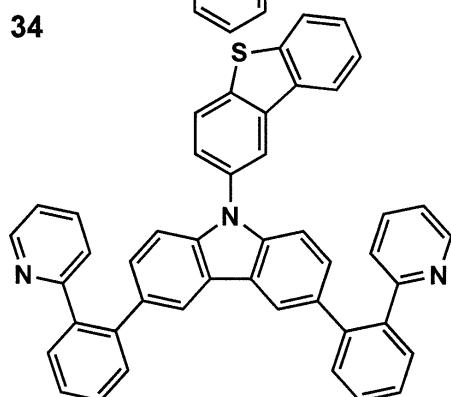
32



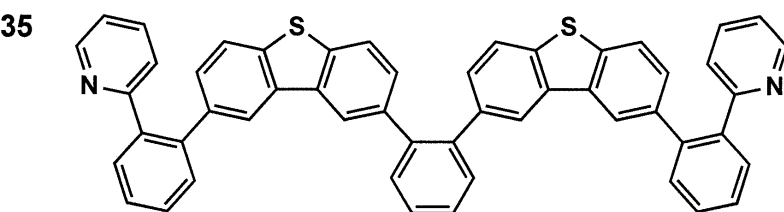
33



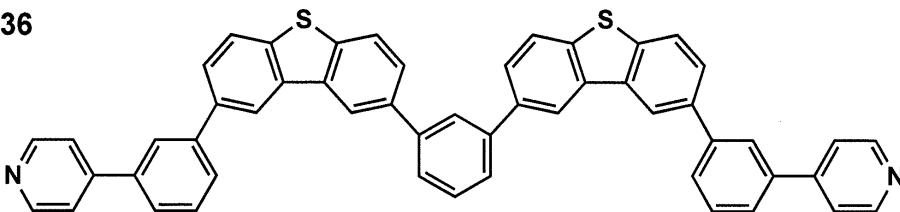
34



35



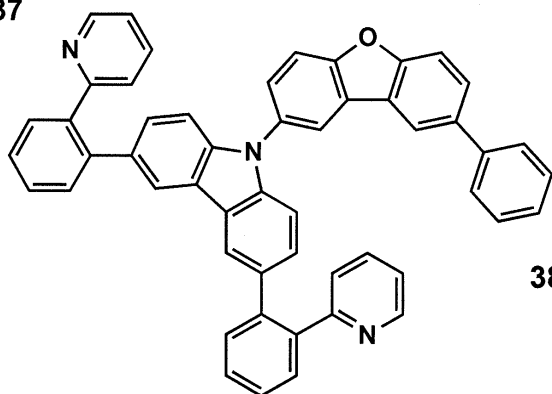
36



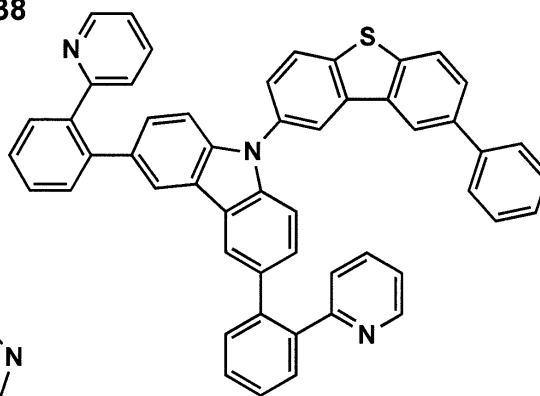
【 0 1 6 8】

【化 2 4】

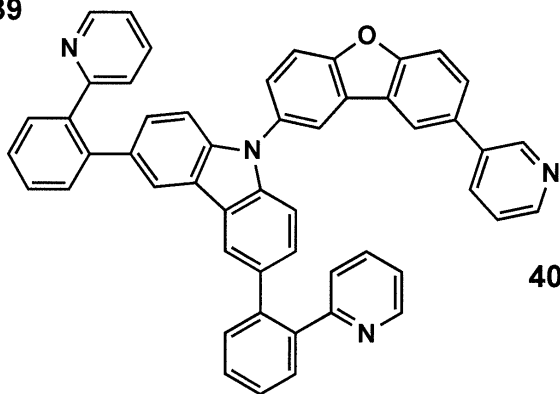
37



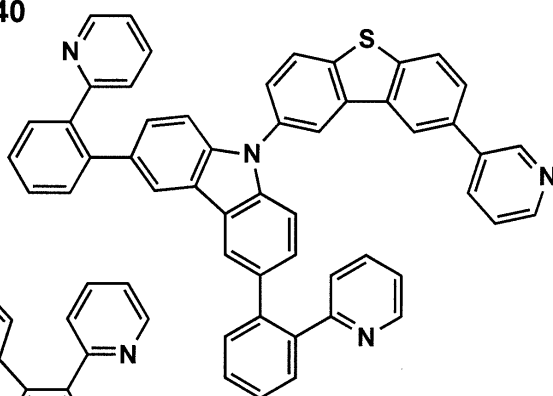
38



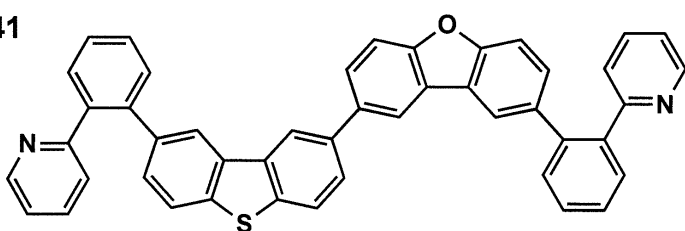
39



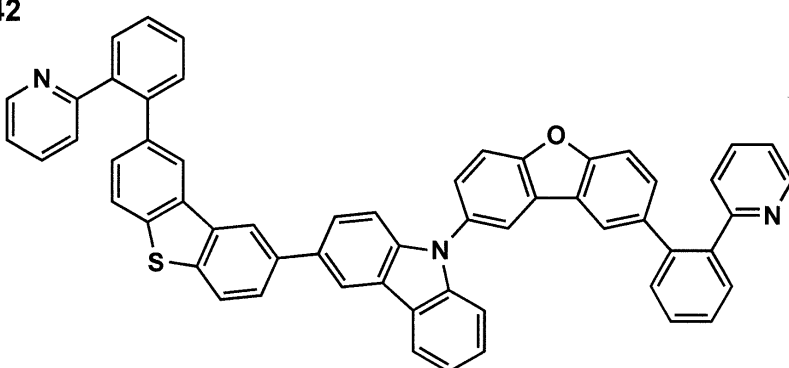
40



41



42



【0169】

10

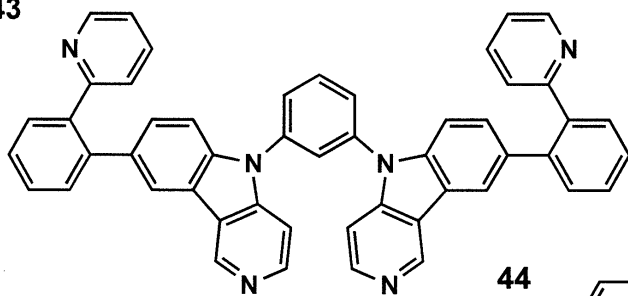
20

30

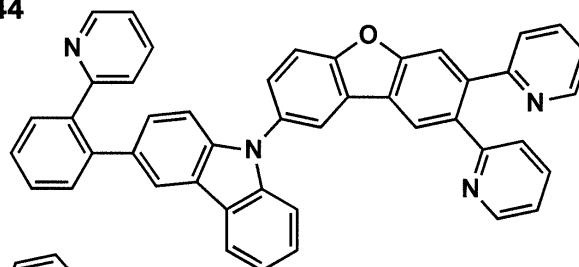
40

【化 2 5】

43

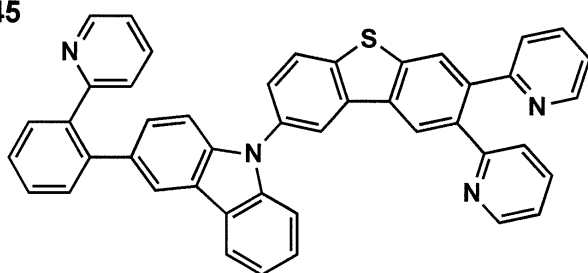


44



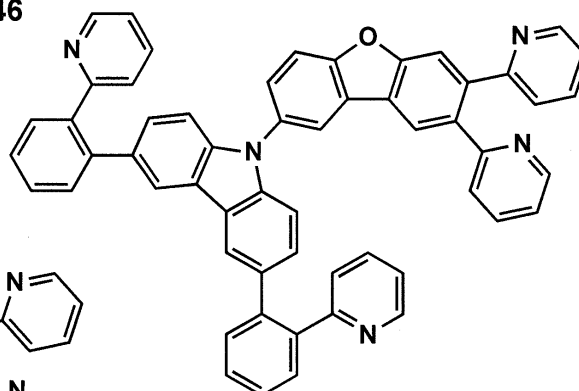
10

45



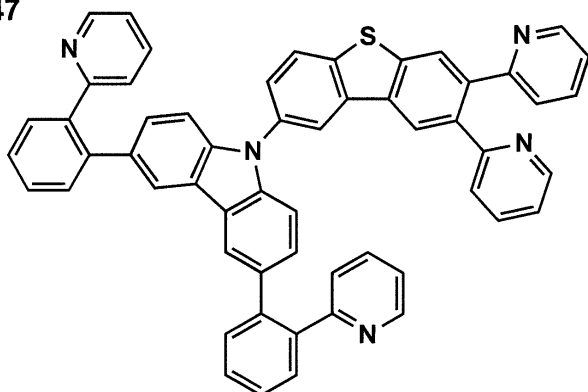
20

46



30

47

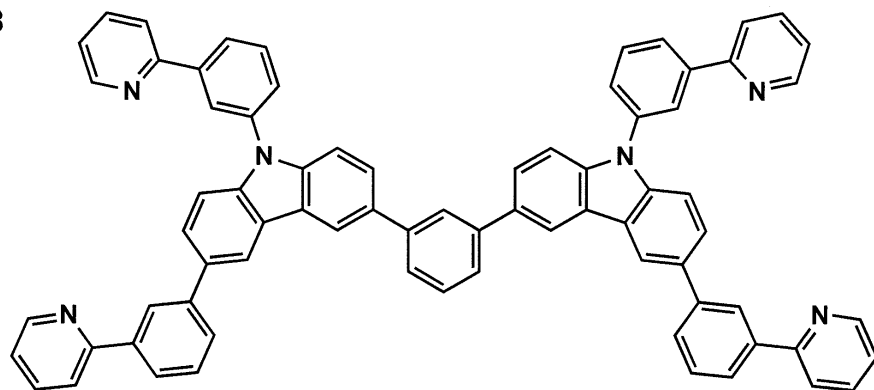


【 0 1 7 0 】

40

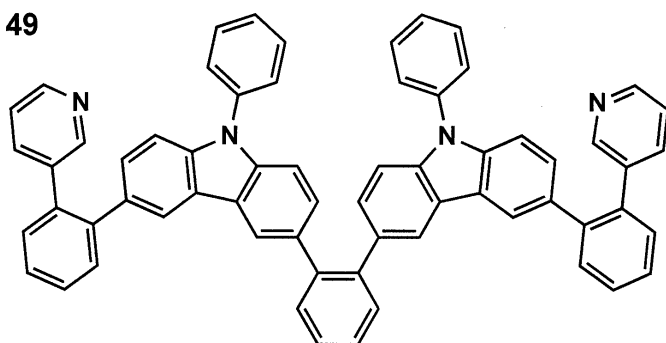
【化 2 6】

48



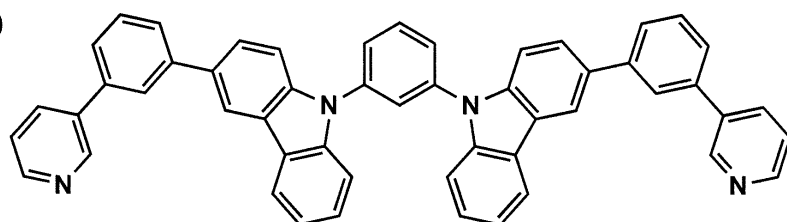
10

49

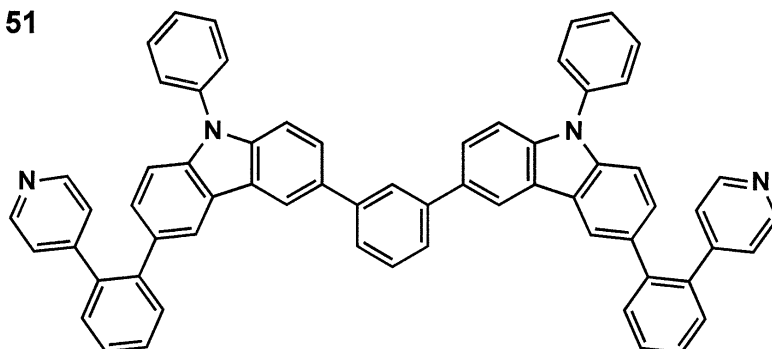


20

50

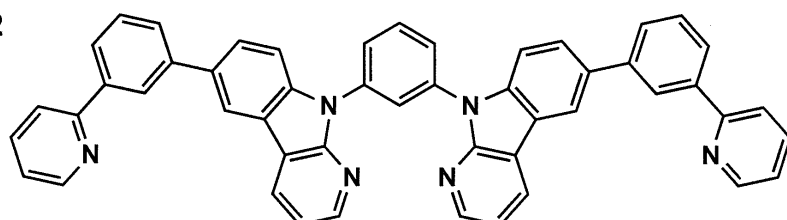


51



30

52

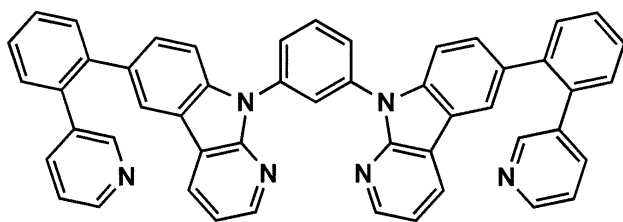


40

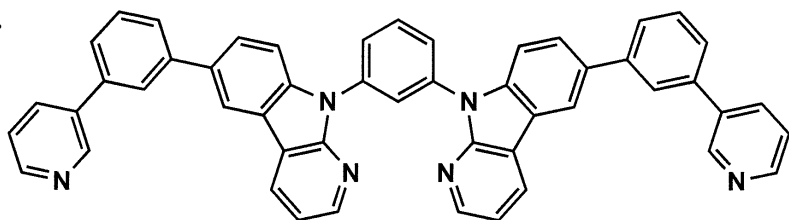
【0 1 7 1】

【化 2 7】

53

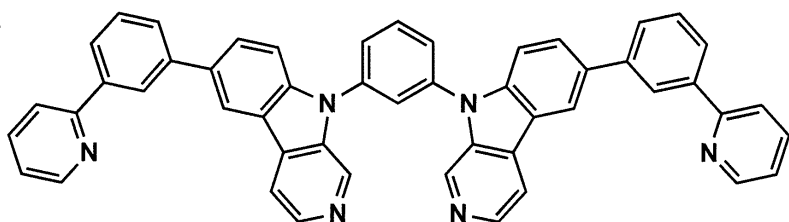


54



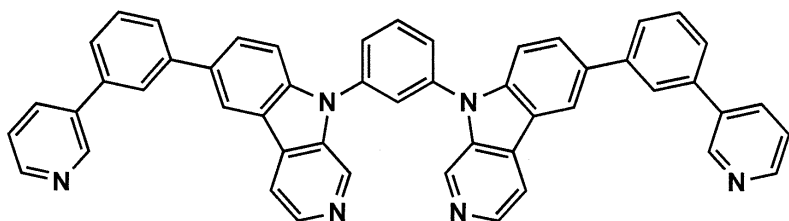
10

55

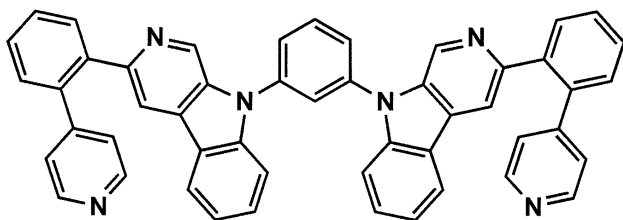


20

56

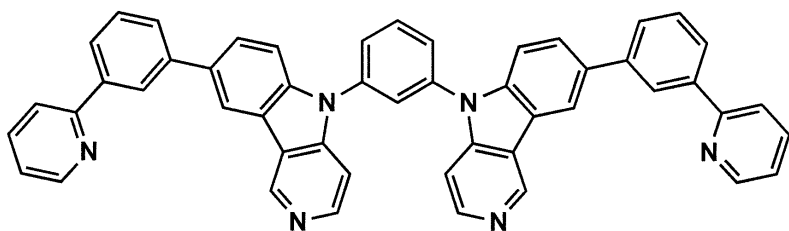


57



30

58

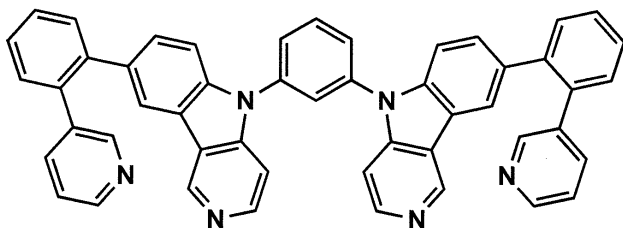


40

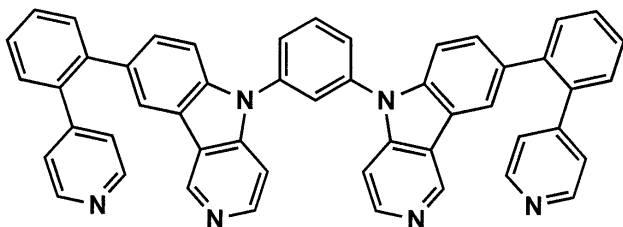
【0 1 7 2】

【化 2 8】

59

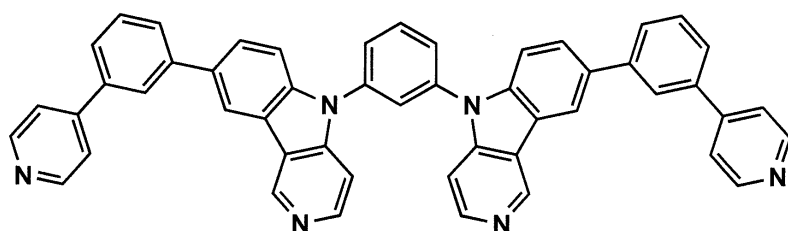


60



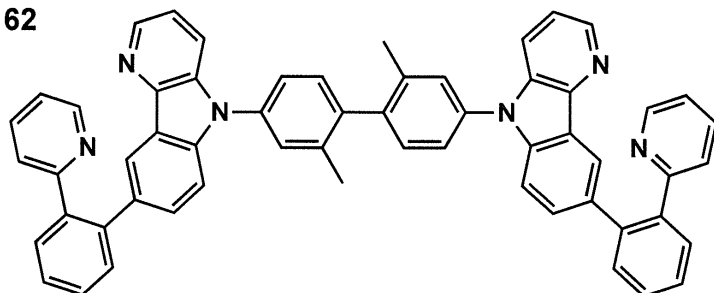
10

61



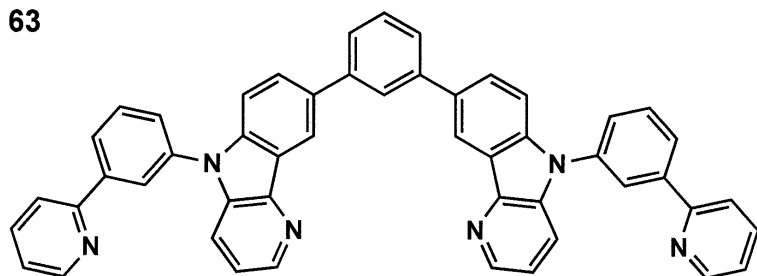
20

62

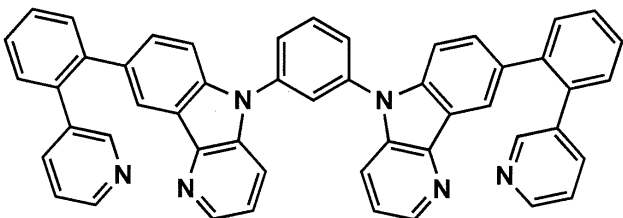


30

63



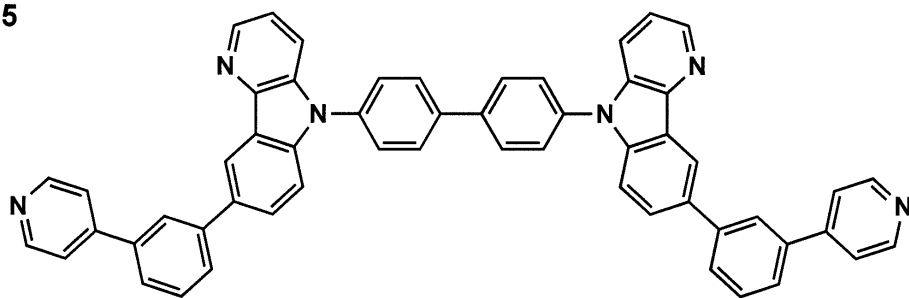
64



40

【0 1 7 3】

65



10

Cc1ccc(cc1)-c2ccc(cc2-c3ccc4c(c3)c5ccc6c4n(c5)c7ccccc7n6)-c8ccc9c(c8)c10ccc11c9n(c10)c12ccc13c11n(c12)c14ccc15c13n(c14)c16ccc17c15n(c16)c18ccc19c17n(c18)c20ccc21c19n(c20)c22ccc23c21n(c22)c24ccc25c23n(c24)c26ccc27c25n(c26)c28ccc29c27n(c28)c30ccc31c29n(c30)c32ccc33c29n(c32)c34ccc35c29n(c34)c36ccc37c29n(c36)c38ccc39c29n(c38)c40ccc41c29n(c40)c42ccc43c29n(c42)c44ccc45c29n(c44)c46ccc47c29n(c46)c48ccc49c29n(c48)c50ccc51c29n(c50)c52ccc53c29n(c52)c54ccc55c29n(c54)c56ccc57c29n(c56)c58ccc59c29n(c58)c60ccc61c29n(c60)c62ccc63c29n(c62)c64ccc65c29n(c64)c66ccc67c29n(c66)c68ccc69c29n(c68)c70ccc71c29n(c70)c72ccc73c29n(c72)c74ccc75c29n(c74)c76ccc77c29n(c76)c78ccc79c29n(c78)c80ccc81c29n(c80)c82ccc83c29n(c82)c84ccc85c29n(c84)c86ccc87c29n(c86)c88ccc89c29n(c88)c90ccc91c29n(c90)c92ccc93c29n(c92)c94ccc95c29n(c94)c96ccc97c29n(c96)c98ccc99c29n(c98)c100ccc101c29n(c100)c102ccc103c29n(c102)c104ccc105c29n(c104)c106ccc107c29n(c106)c108ccc109c29n(c108)c110ccc111c29n(c110)c112ccc113c29n(c112)c114ccc115c29n(c114)c116ccc117c29n(c116)c118ccc119c29n(c118)c120ccc121c29n(c120)c122ccc123c29n(c122)c124ccc125c29n(c124)c126ccc127c29n(c126)c128ccc129c29n(c128)c130ccc131c29n(c130)c132ccc133c29n(c132)c134ccc135c29n(c134)c136ccc137c29n(c136)c138ccc139c29n(c138)c140ccc141c29n(c140)c142ccc143c29n(c142)c144ccc145c29n(c144)c146ccc147c29n(c146)c148ccc149c29n(c148)c150ccc151c29n(c150)c152ccc153c29n(c152)c154ccc155c29n(c154)c156ccc157c29n(c156)c158ccc159c29n(c158)c160ccc161c29n(c160)c162ccc163c29n(c162)c164ccc165c29n(c164)c166ccc167c29n(c166)c168ccc169c29n(c168)c170ccc171c29n(c170)c172ccc173c29n(c172)c174ccc175c29n(c174)c176ccc177c29n(c176)c178ccc179c29n(c178)c180ccc181c29n(c180)c182ccc183c29n(c182)c184ccc185c29n(c184)c186ccc187c29n(c186)c188ccc189c29n(c188)c190ccc191c29n(c190)c192ccc193c29n(c192)c194ccc195c29n(c194)c196ccc197c29n(c196)c198ccc199c29n(c198)c200ccc201c29n(c200)c202ccc203c29n(c202)c204ccc205c29n(c204)c206ccc207c29n(c206)c208ccc209c29n(c208)c210ccc211c29n(c210)c212ccc213c29n(c212)c214ccc215c29n(c214)c216ccc217c29n(c216)c218ccc219c29n(c218)c220ccc221c29n(c220)c222ccc223c29n(c222)c224ccc225c29n(c224)c226ccc227c29n(c226)c228ccc229c29n(c228)c230ccc231c29n(c230)c232ccc233c29n(c232)c234ccc235c29n(c234)c236ccc237c29n(c236)c238ccc239c29n(c238)c240ccc241c29n(c240)c242ccc243c29n(c242)c244ccc245c29n(c244)c246ccc247c29n(c246)c248ccc249c29n(c248)c250ccc251c29n(c250)c252ccc253c29n(c252)c254ccc255c29n(c254)c256ccc257c29n(c256)c258ccc259c29n(c258)c260ccc261c29n(c260)c262ccc263c29n(c262)c264ccc265c29n(c264)c266ccc267c29n(c266)c268ccc269c29n(c268)c270ccc271c29n(c270)c272ccc273c29n(c272)c274ccc275c29n(c274)c276ccc277c29n(c276)c278ccc279c29n(c278)c280ccc281c29n(c280)c282ccc283c29n(c282)c284ccc285c29n(c284)c286ccc287c29n(c286)c288ccc289c29n(c288)c290ccc291c29n(c290)c292ccc293c29n(c292)c294ccc295c29n(c294)c296ccc297c29n(c296)c298ccc299c29n(c298)c300ccc301c29n(c300)c302ccc303c29n(c302)c304ccc305c29n(c304)c306ccc307c29n(c306)c308ccc309c29n(c308)c310ccc311c29n(c310)c312ccc313c29n(c312)c314ccc315c29n(c314)c316ccc317c29n(c316)c318ccc319c29n(c318)c320ccc321c29n(c320)c322ccc323c29n(c322)c324ccc325c29n(c324)c326ccc327c29n(c326)c328ccc329c29n(c328)c330ccc331c29n(c330)c332ccc333c29n(c332)c334ccc335c29n(c334)c336ccc337c29n(c336)c338ccc339c29n(c338)c340ccc341c29n(c340)c342ccc343c29n(c342)c344ccc345c29n(c344)c346ccc347c29n(c346)c348ccc349c29n(c348)c350ccc351c29n(c350)c352ccc353c29n(c352)c354ccc355c29n(c354)c356ccc357c29n(c356)c358ccc359c29n(c358)c360ccc361c29n(c360)c362ccc363c29n(c362)c364ccc365c29n(c364)c366ccc367c29n(c366)c368ccc369c29n(c368)c370ccc371c29n(c370)c372ccc373c29n(c372)c374ccc375c29n(c374)c376ccc377c29n(c376)c378ccc379c29n(c378)c380ccc381c29n(c380)c382ccc383c29n(c382)c384ccc385c29n(c384)c386ccc387c29n(c386)c388ccc389c29n(c388)c390ccc391c29n(c390)c392ccc393c29n(c392)c394ccc395c29n(c394)c396ccc397c29n(c396)c398ccc399c29n(c398)c400ccc401c29n(c400)c402ccc403c29n(c402)c404ccc405c29n(c404)c406ccc407c29n(c406)c408ccc409c29n(c408)c410ccc411c29n(c410)c412ccc413c29n(c412)c414ccc415c29n(c414)c416ccc417c29n(c416)c418ccc419c29n(c418)c420ccc421c29n(c420)c422ccc423c29n(c422)c424ccc425c29n(c424)c426ccc427c29n(c426)c428ccc429c29n(c428)c430ccc431c29n(c430)c432ccc433c29n(c432)c434ccc435c29n(c434)c436ccc437c29n(c436)c438ccc439c29n(c438)c440ccc441c29n(c440)c442ccc443c29n(c442)c444ccc445c29n(c444)c446ccc447c29n(c446)c448ccc449c29n(c448)c450ccc451c29n(c450)c452ccc453c29n(c452)c454ccc455c29n(c454)c456ccc457c29n(c456)c458ccc459c29n(c458)c460ccc461c29n(c460)c462ccc463c29n(c462)c464ccc465c29n(c464)c466ccc467c29n(c466)c468ccc469c29n(c468)c470ccc471c29n(c470)c472ccc473c29n(c472)c474ccc475c29n(c474)c476ccc477c29n(c476)c478ccc479c29n(c478)c480ccc481c29n(c480)c482ccc483c29n(c482)c484ccc485c29n(c484)c486ccc487c29n(c486)c488ccc489c29n(c488)c490ccc491c29n(c490)c492ccc493c29n(c492)c494ccc495c29n(c494)c496ccc497c29n(c496)c498ccc499c29n(c498)c500ccc501c29n(c500)c502ccc503c29n(c502)c504ccc505c29n(c504)c506ccc507c29n(c506)c508ccc509c29n(c508)c510ccc511c29n(c510)c512ccc513c29n(c512)c514ccc515c29n(c514)c516ccc517c29n(c516)c518ccc519c29n(c518)c520ccc521c29n(c520)c522ccc523c29n(c522)c524ccc525c29n(c524)c526ccc527c29n(c526)c528ccc529c29n(c528)c530ccc531c29n(c530)c532ccc533c29

20

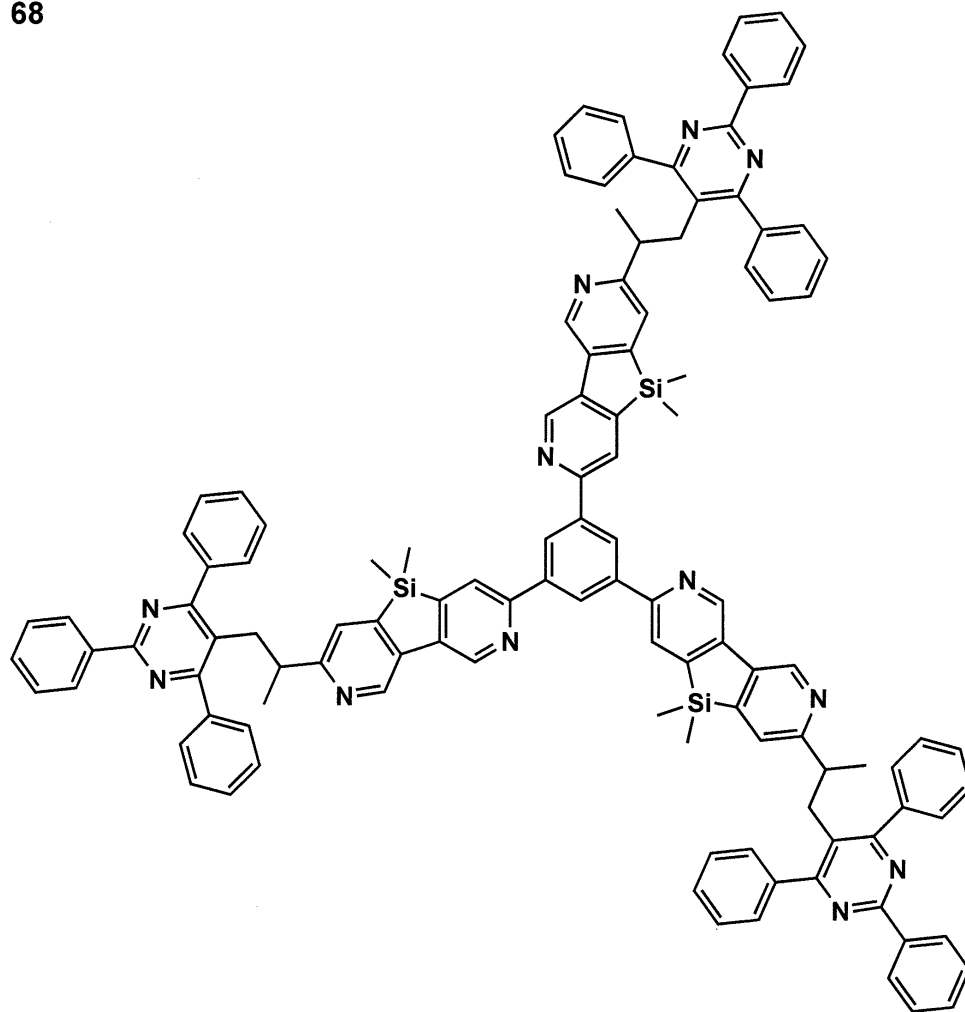
Cc1ccc2c(c1)c3cc4c(c2)c5ccccc5c6n7ccccc7n6c8ccccc8n3c4Oc1ccc2c(c1)c3cc4c(c2)c5ccccc5c6n7ccccc7n6c8ccccc8n3c4

30

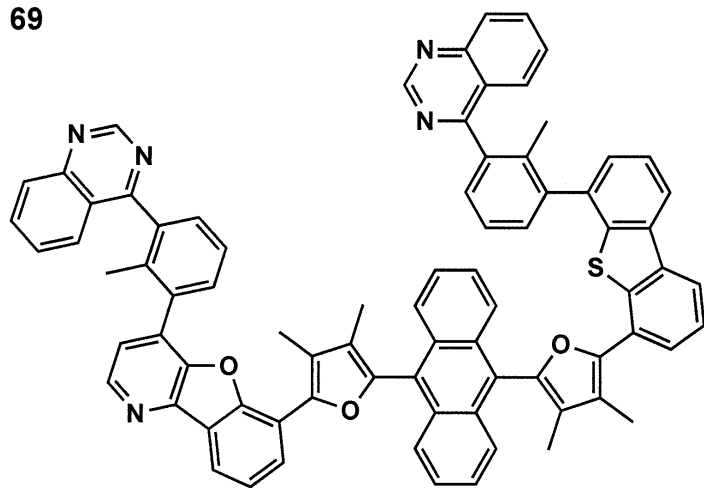
【 0 1 7 4 】

【化 3 0】

68



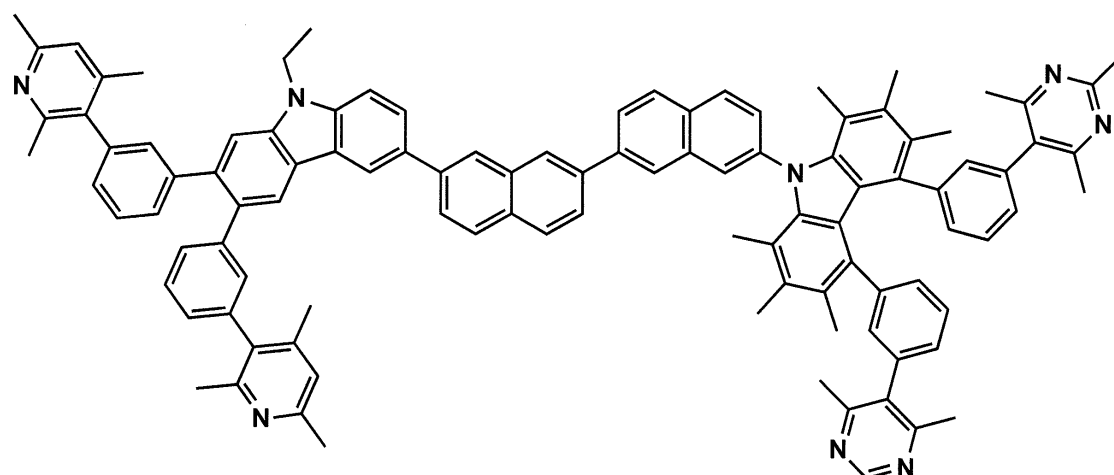
69



【 0 1 7 5】

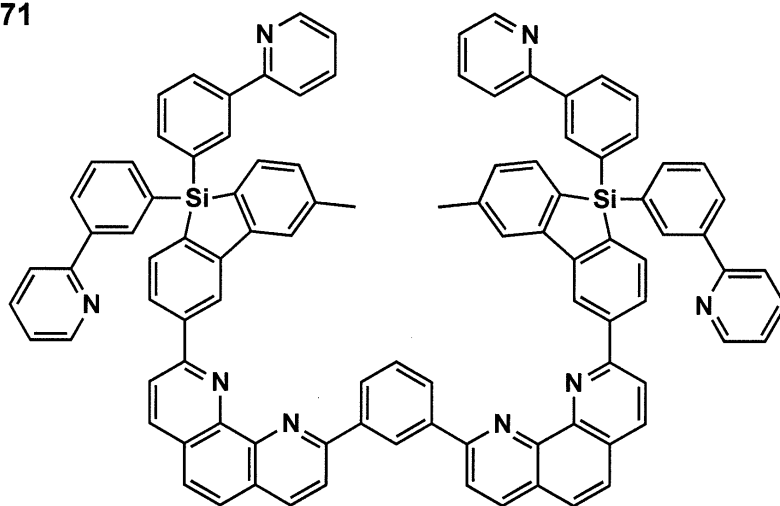
【化 3 1】

70



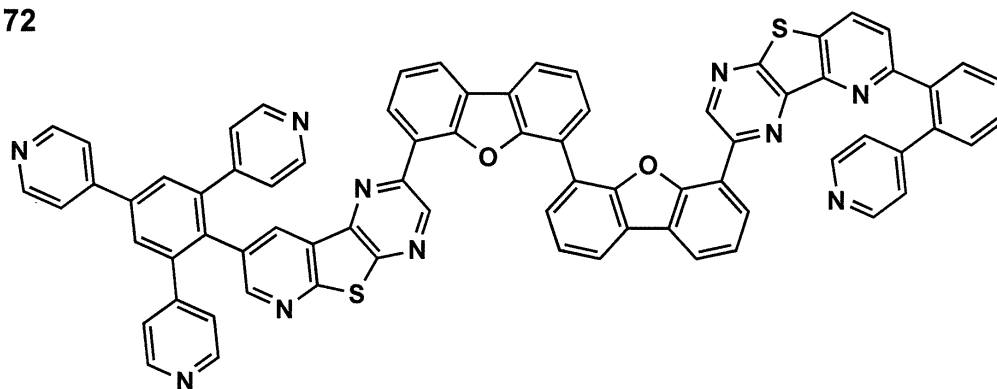
10

71



20

72



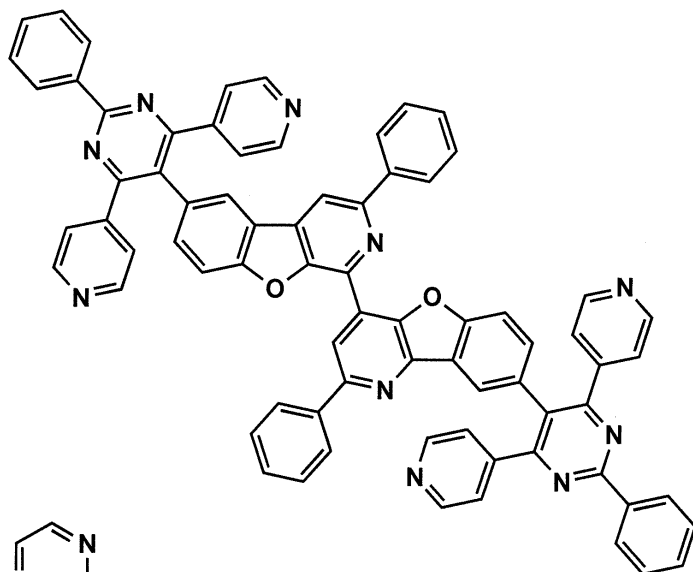
30

【0 1 7 6】

40

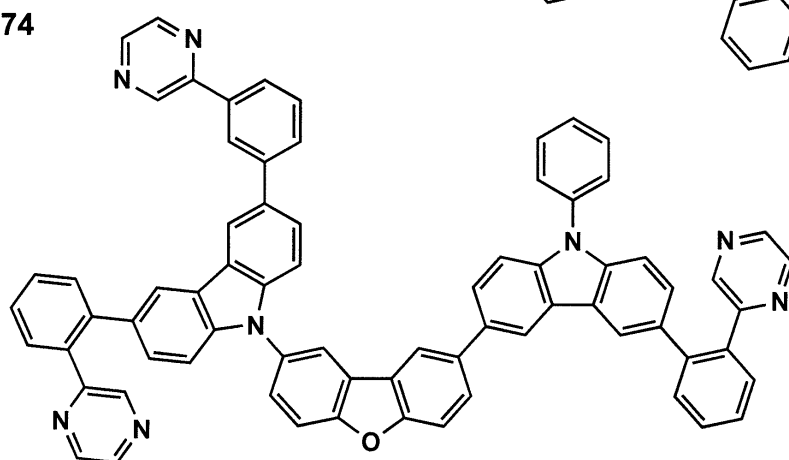
【化 3 2】

73



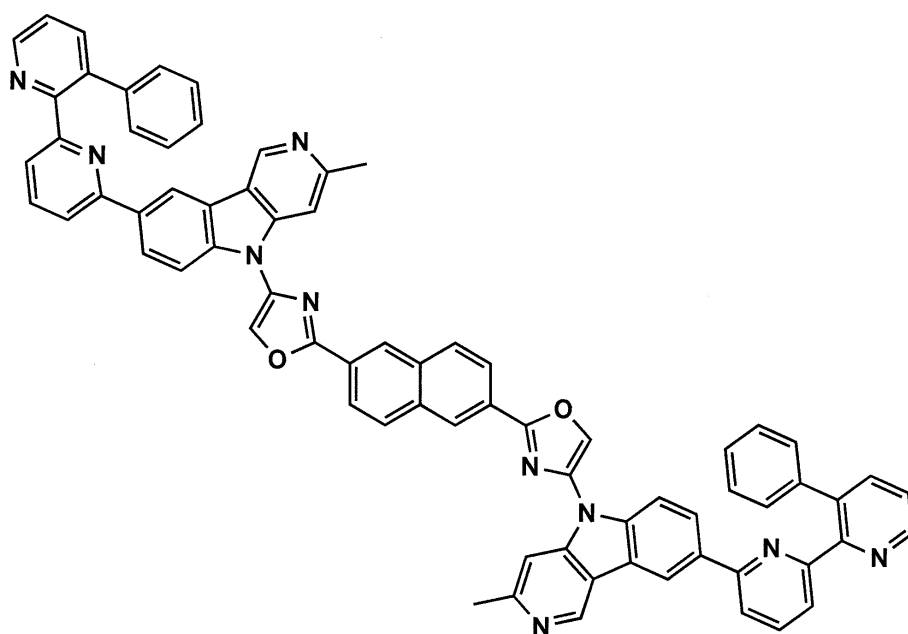
10

74



20

75



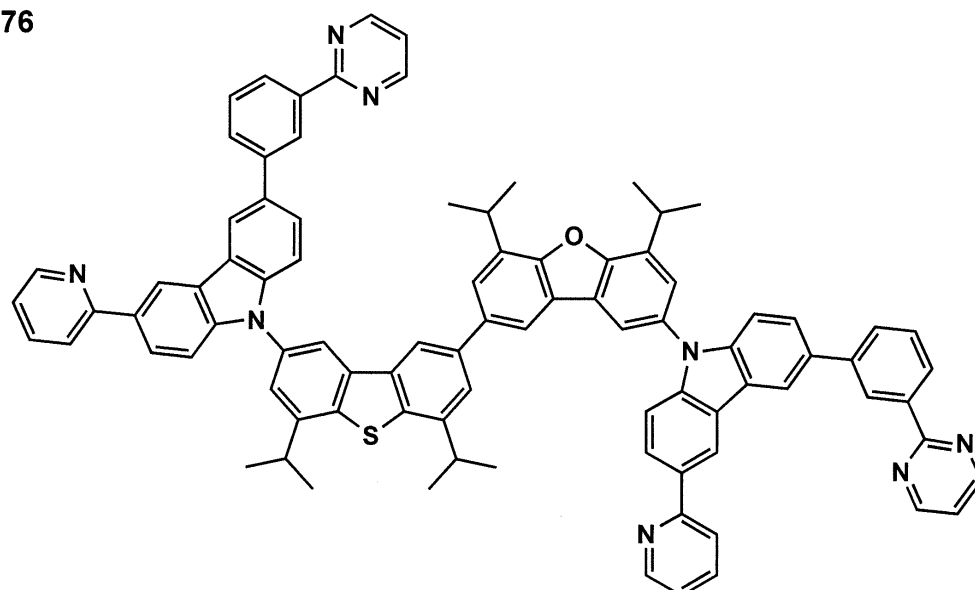
30

40

【0 1 7 7】

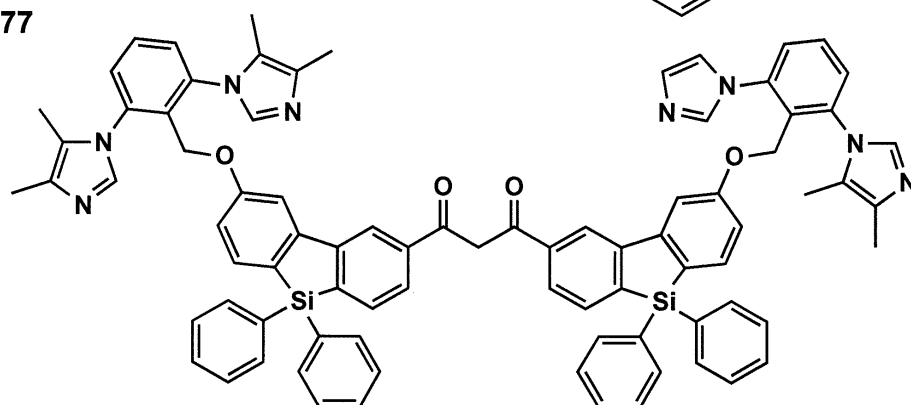
【化 3 3】

76



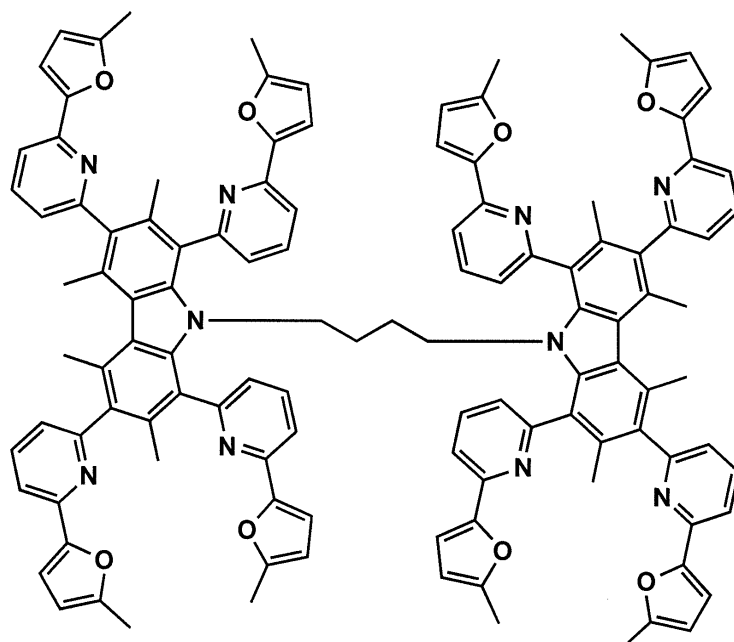
10

77



20

78



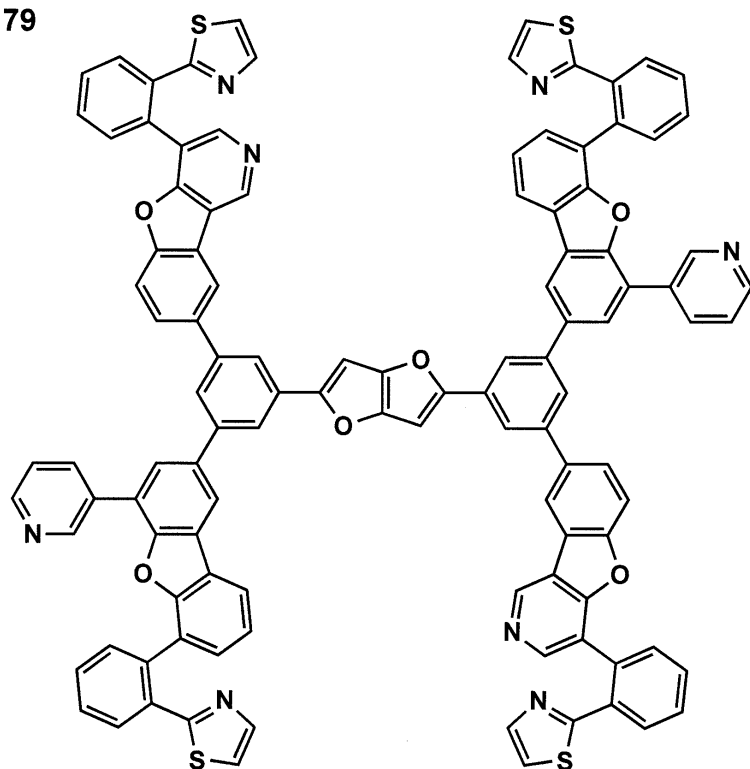
30

40

【0 1 7 8】

【化 3 4】

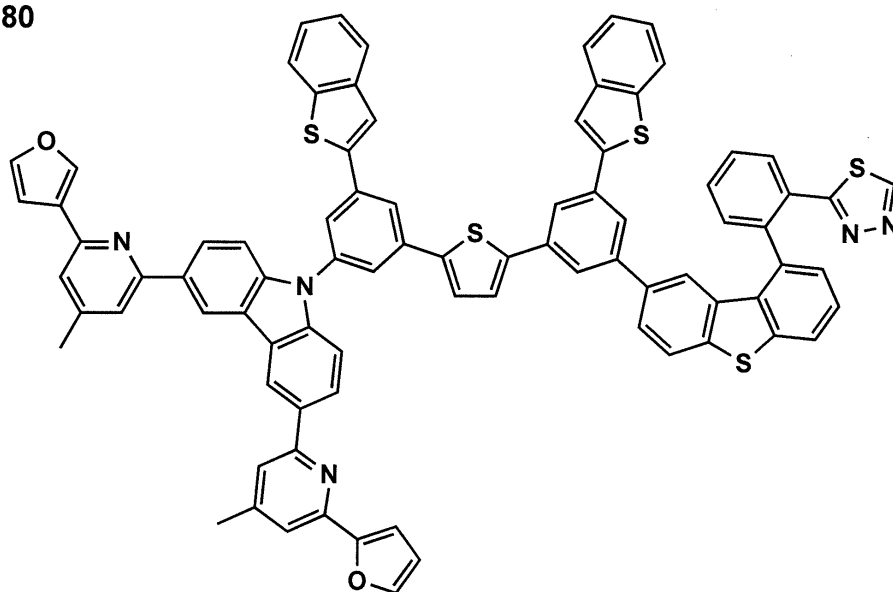
79



10

20

80

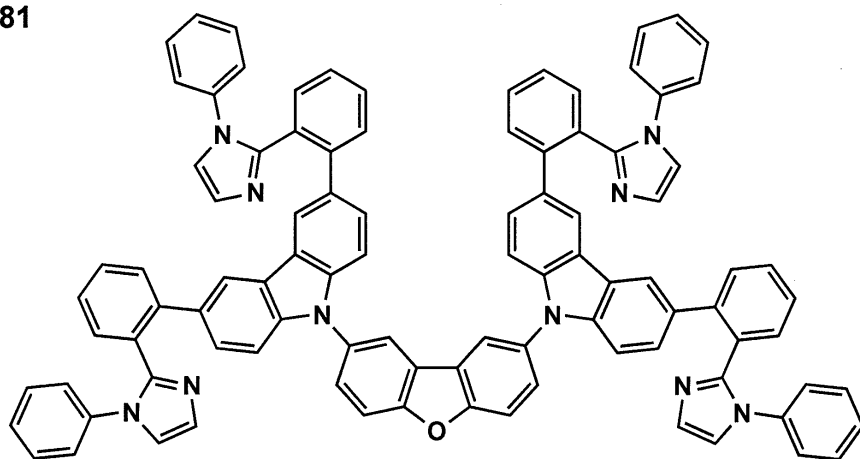


30

【 0 1 7 9】

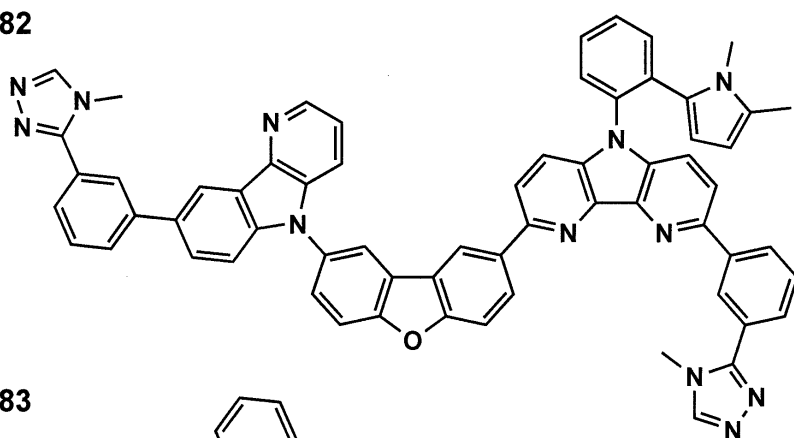
【化 3 5】

81



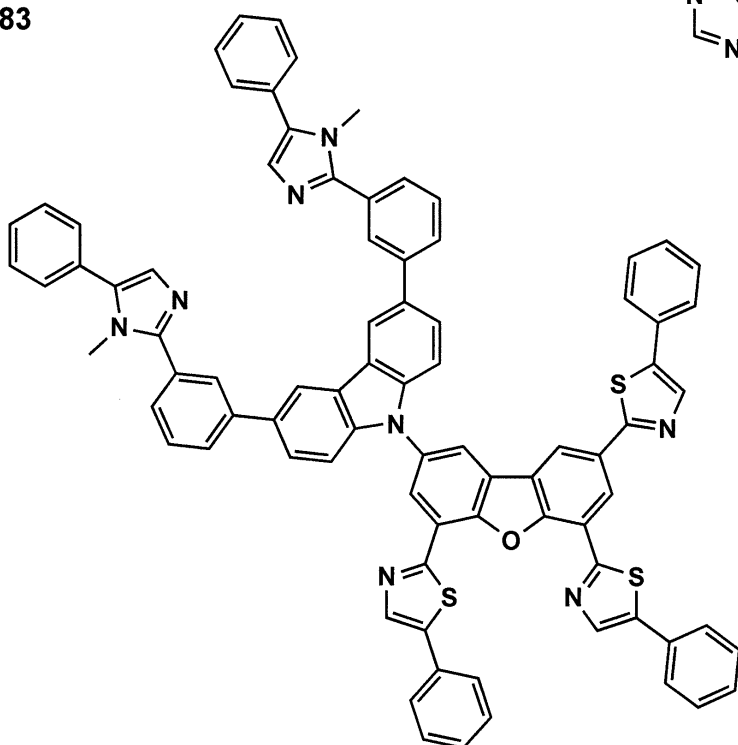
10

82



20

83



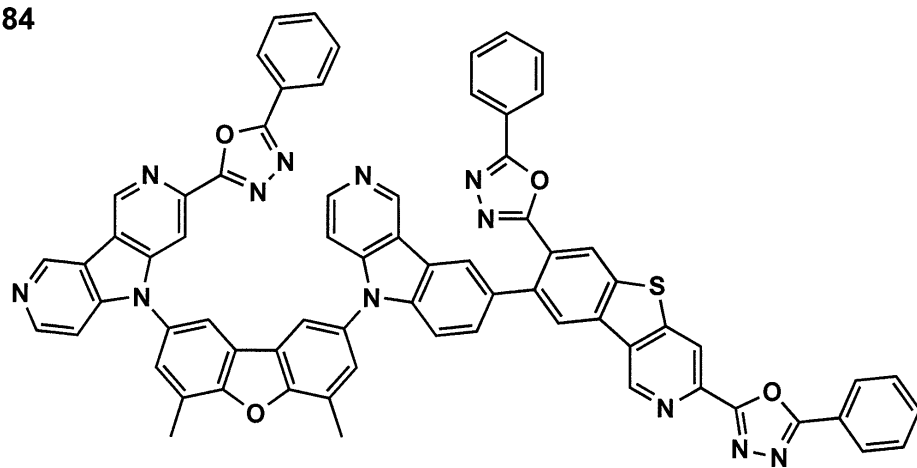
30

40

【0180】

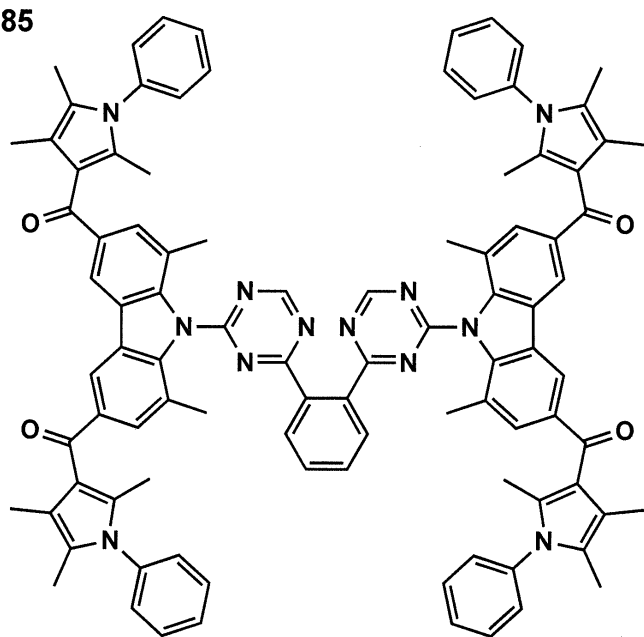
【化 3 6】

84



10

85



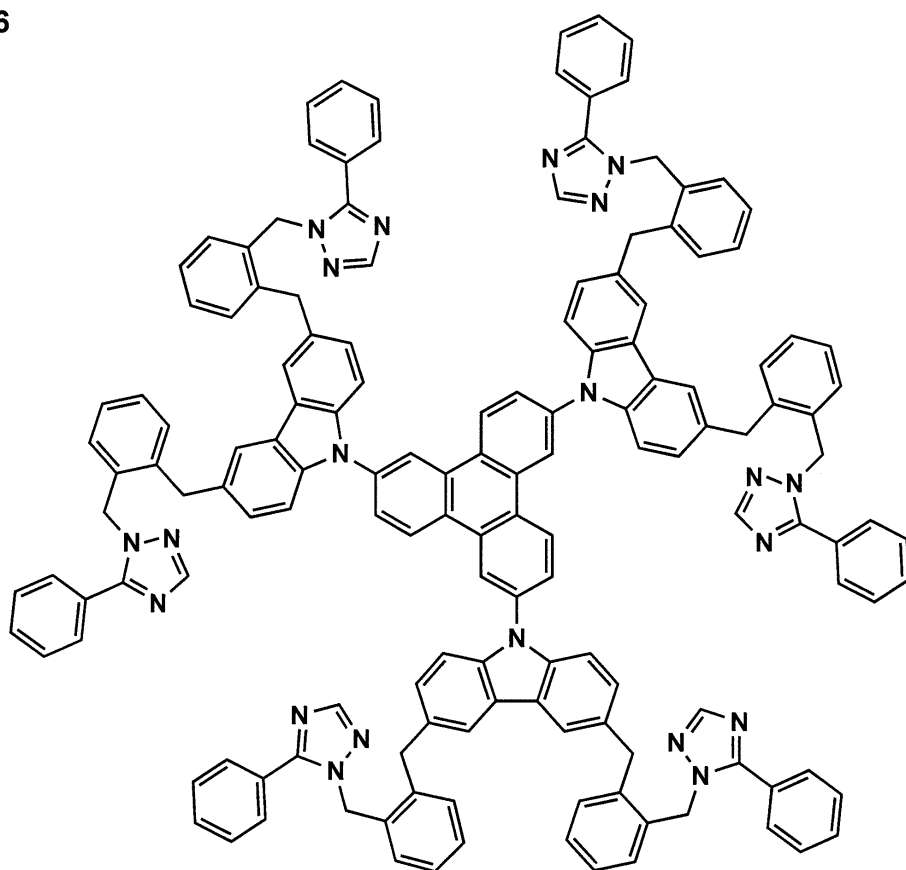
20

30

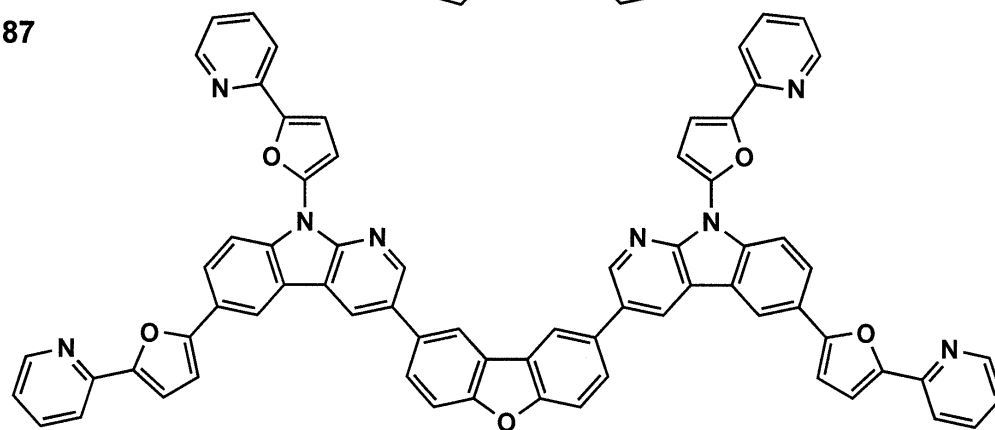
【 0 1 8 1】

【化 3 7】

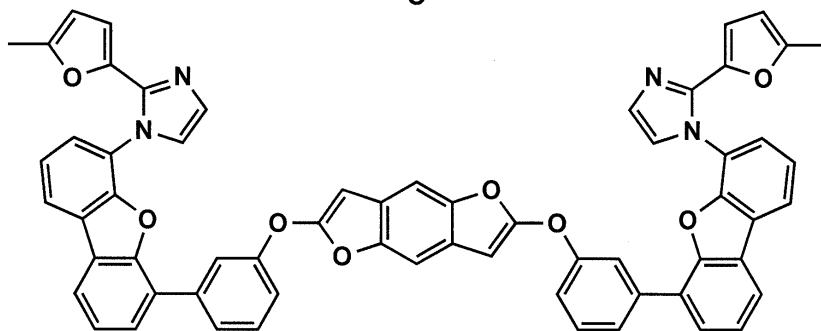
86



87



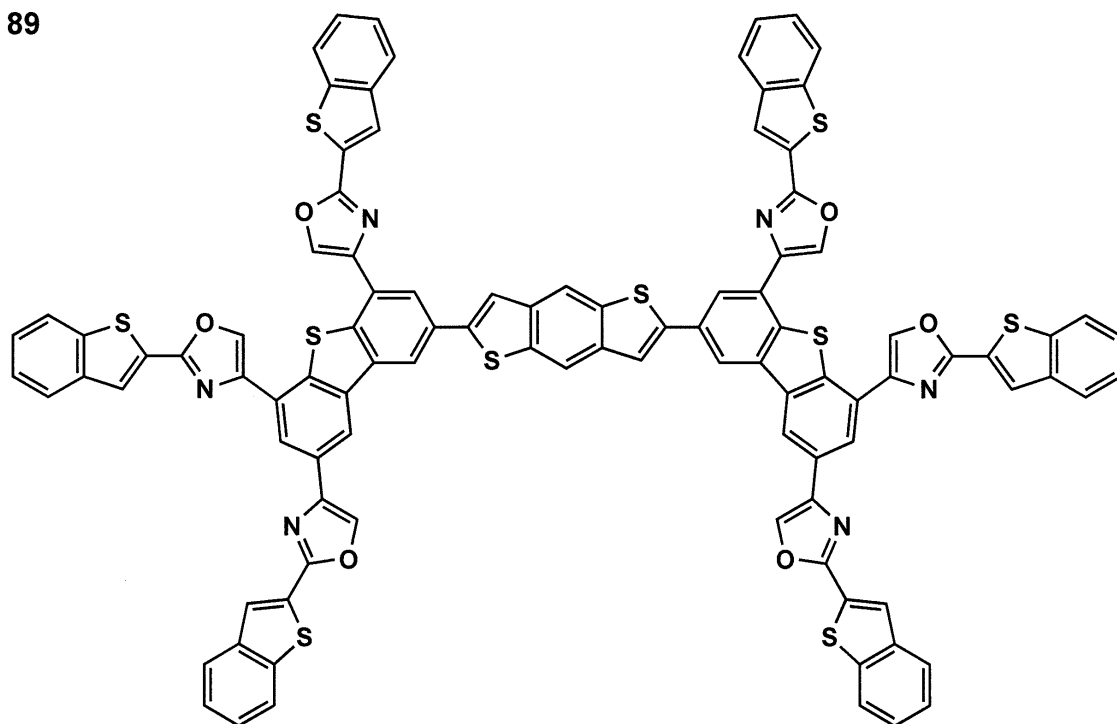
88



【0 1 8 2】

【化 3 8】

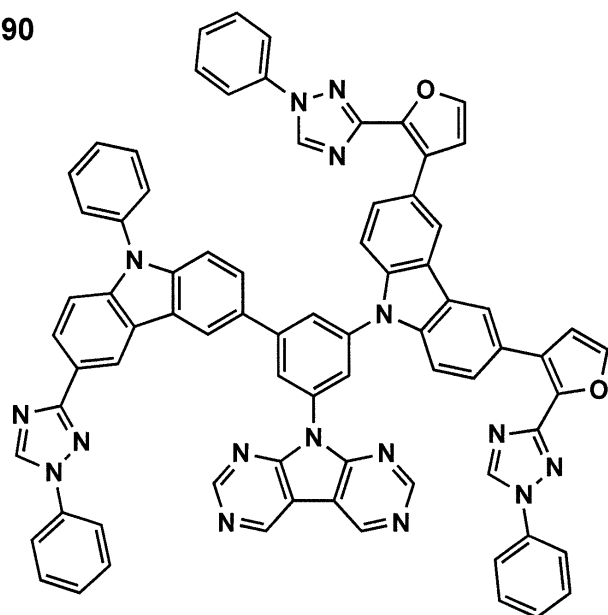
89



10

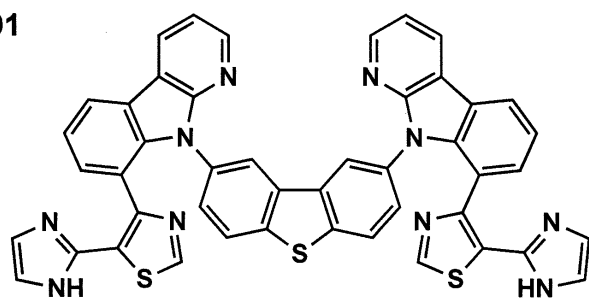
20

90



30

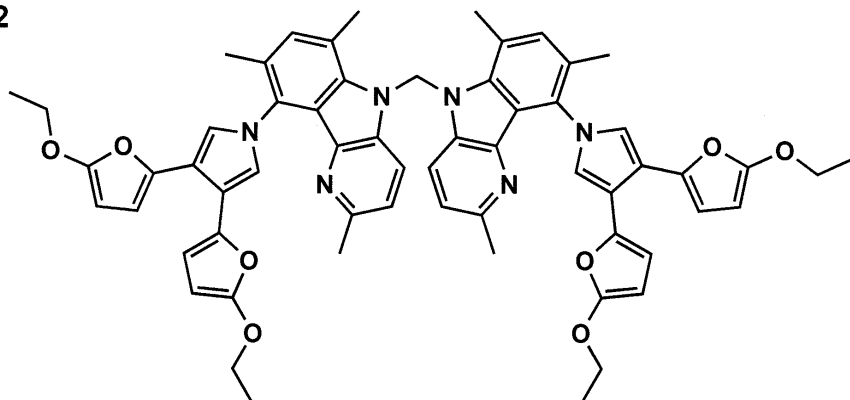
91



40

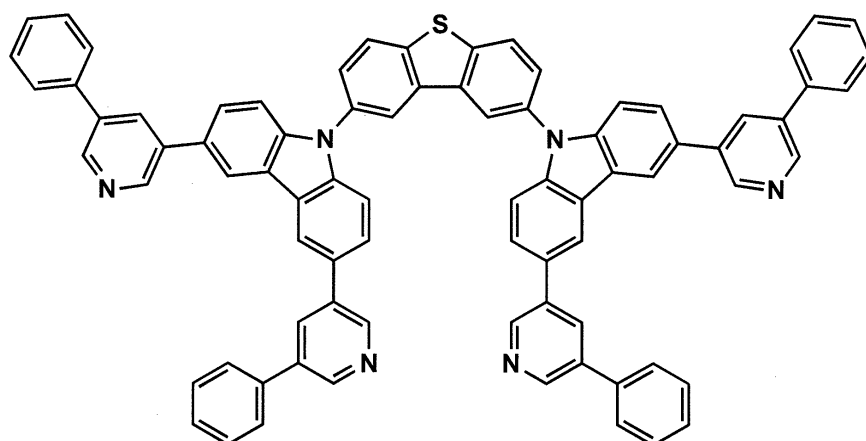
【 0 1 8 3】

92



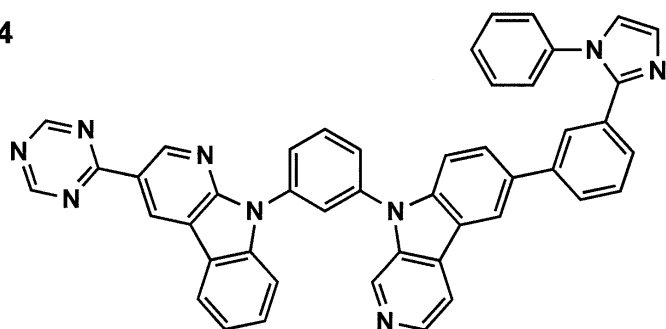
10

93



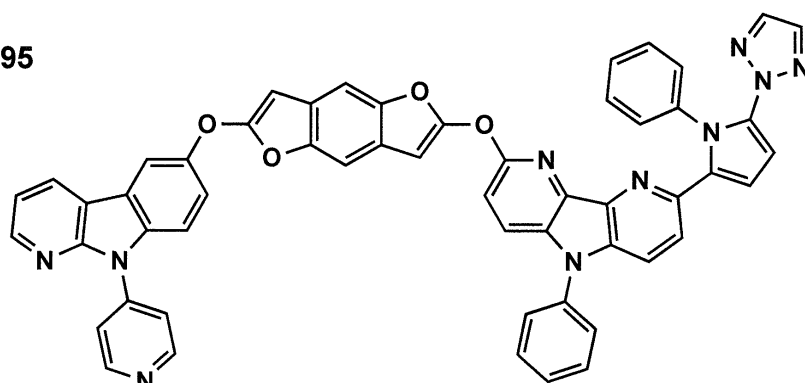
20

94



30

95

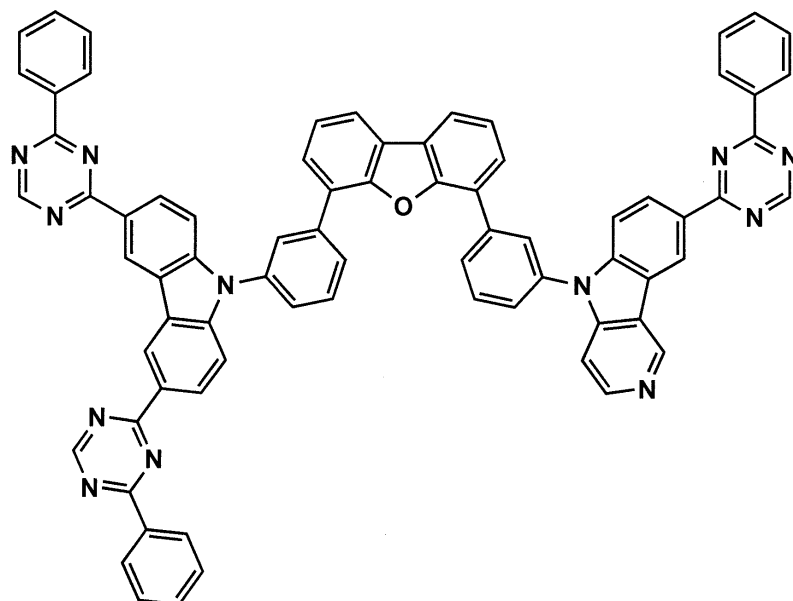


40

【 0 1 8 4 】

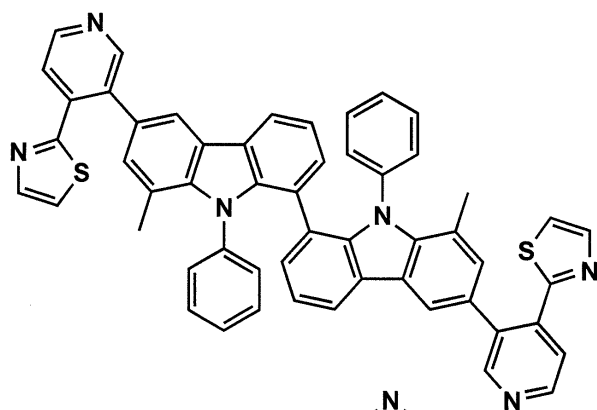
【化 4 0】

96



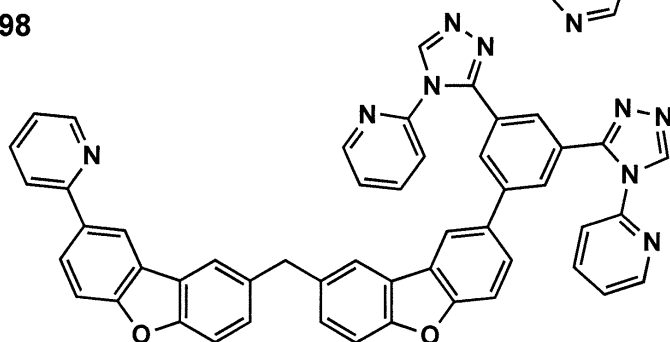
10

97



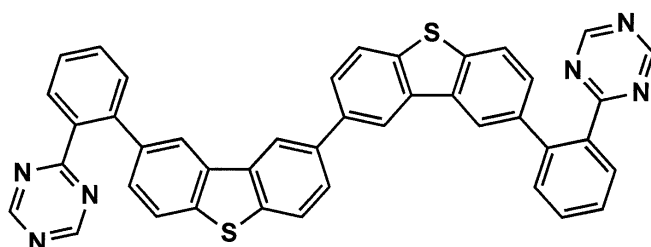
20

98



30

99

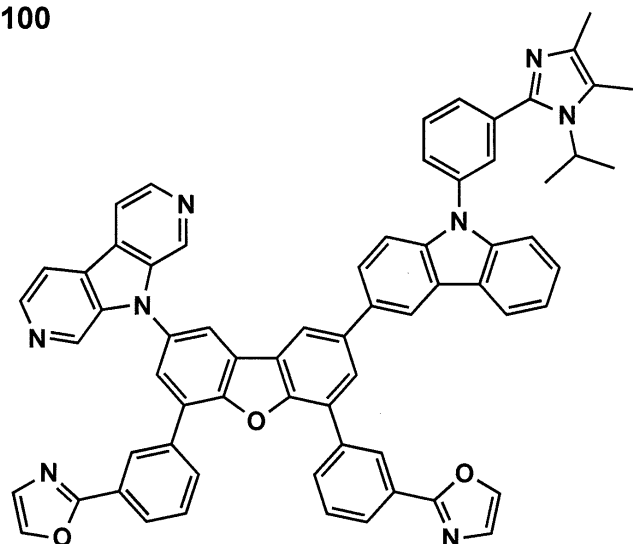


40

【 0 1 8 5】

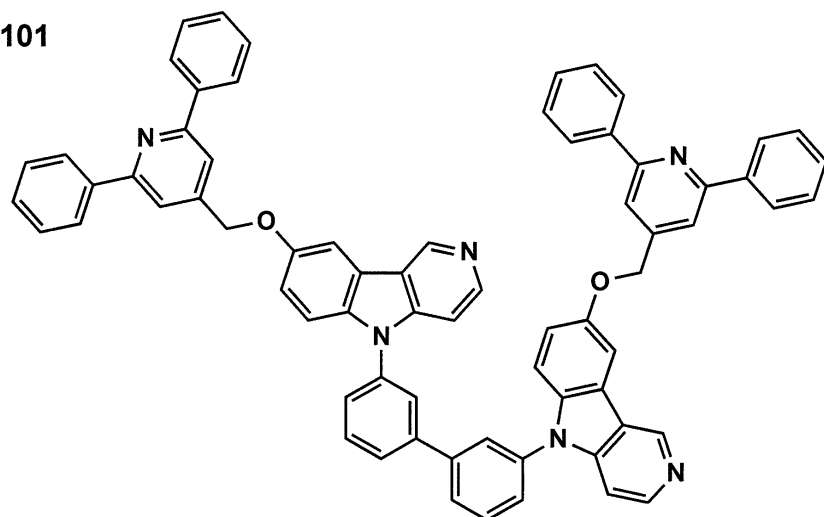
【化 4 1】

100



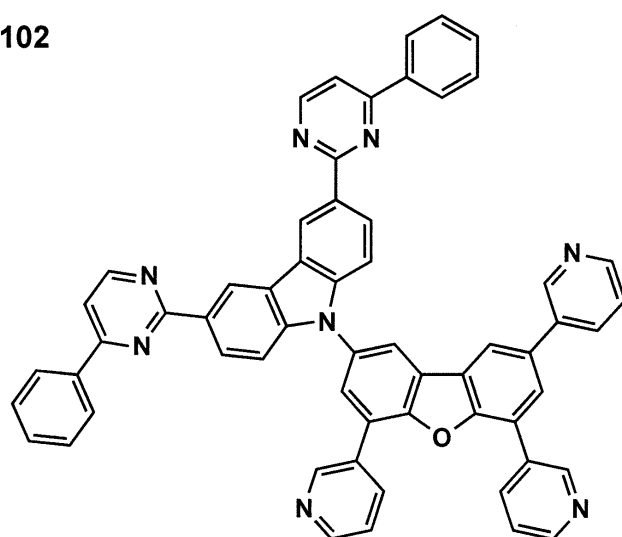
10

101



20

102



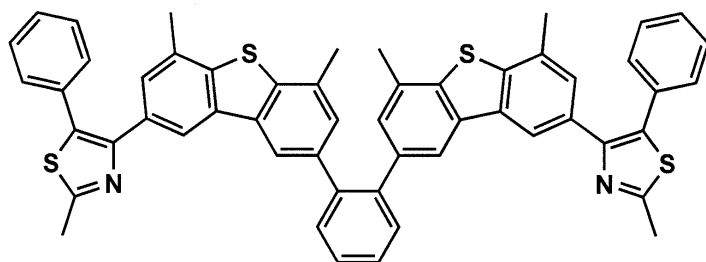
30

40

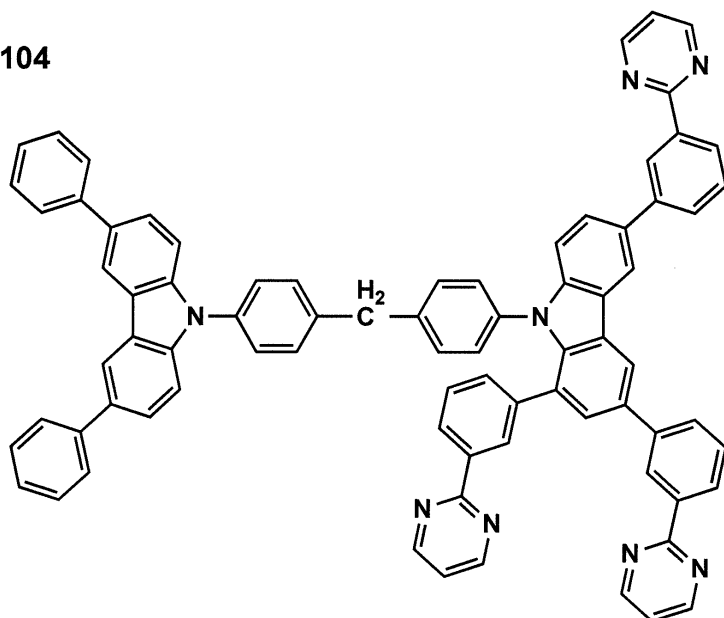
【0186】

【化 4 2】

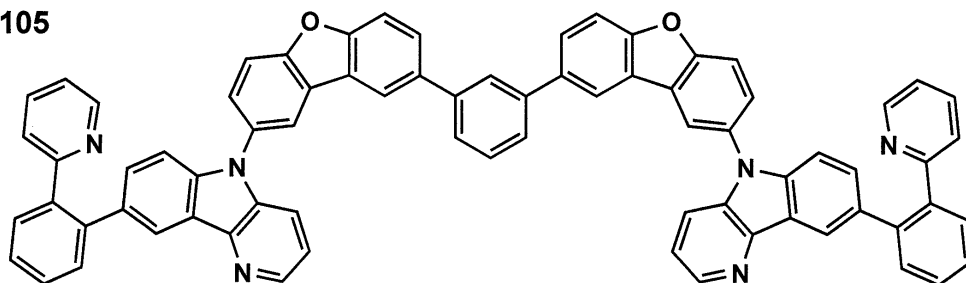
103



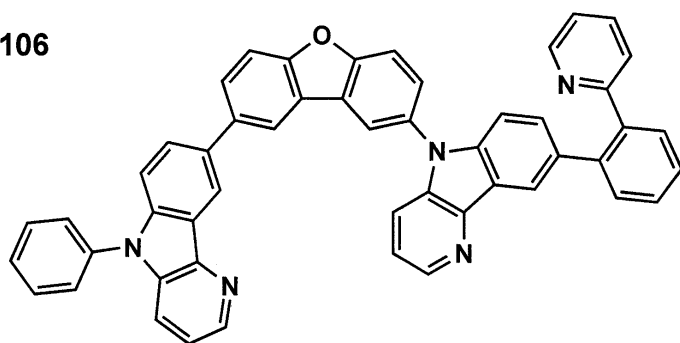
104



105



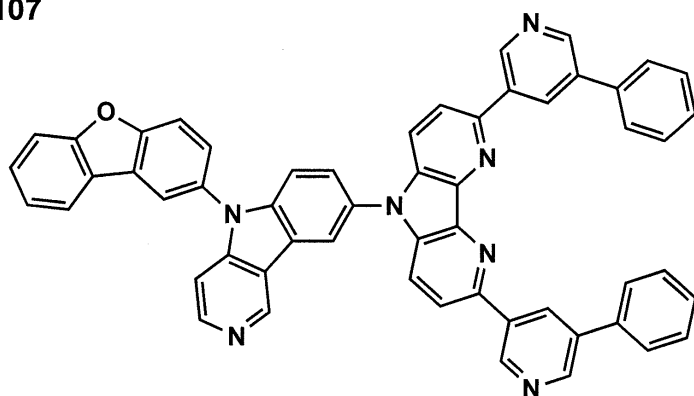
106



【 0 1 8 7】

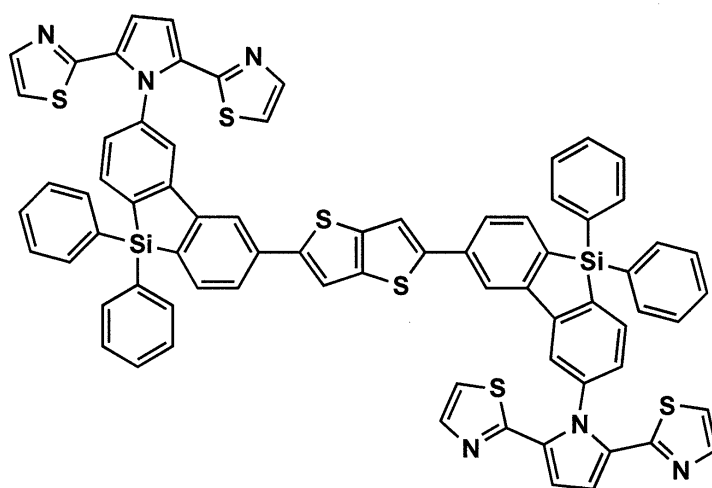
【化 4 3】

107



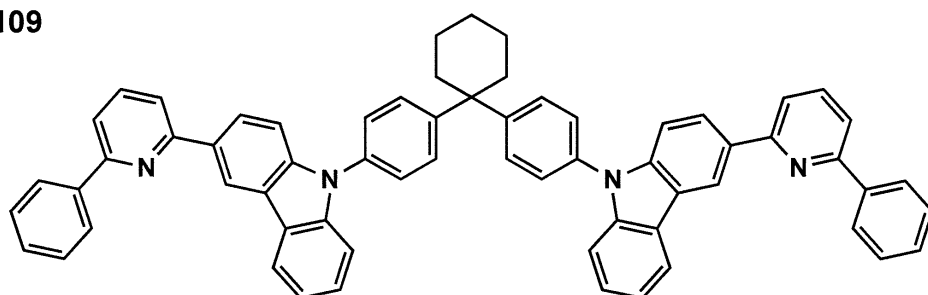
10

108



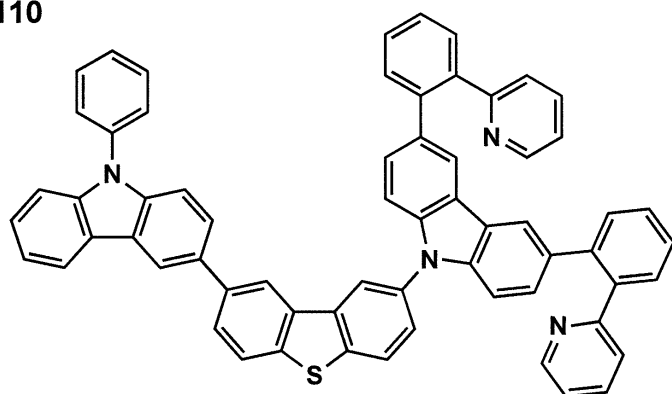
20

109



30

110

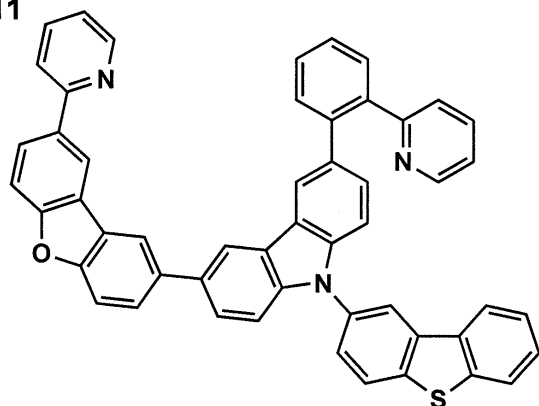


40

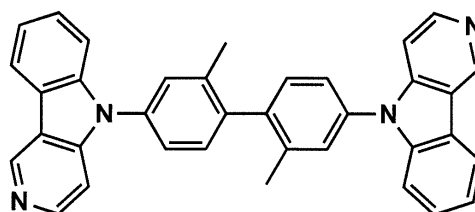
【0188】

【化 4 4】

111

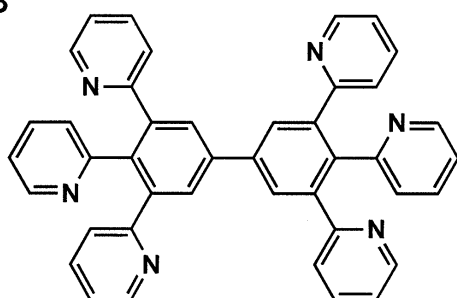


112

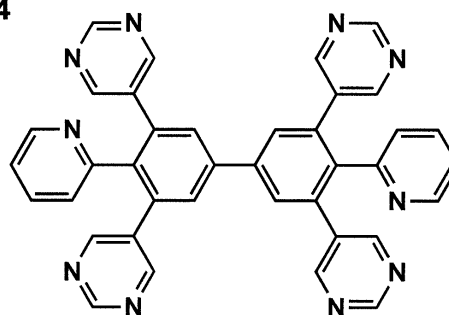


10

113

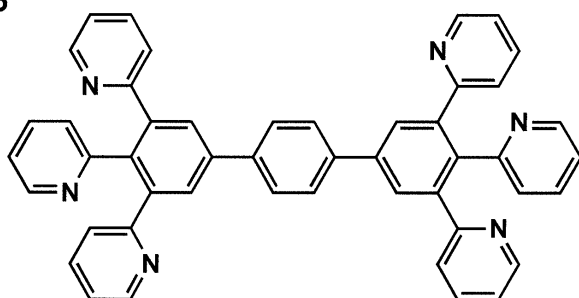


114

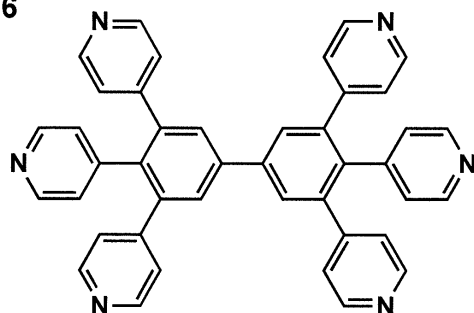


20

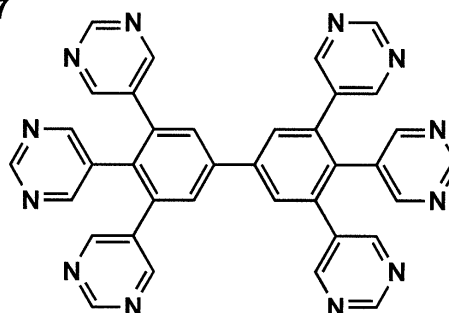
115



116

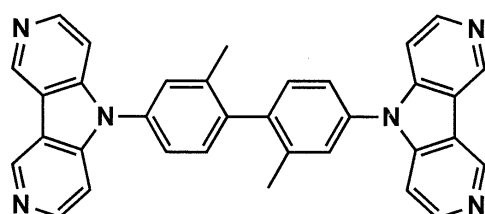


117



30

118

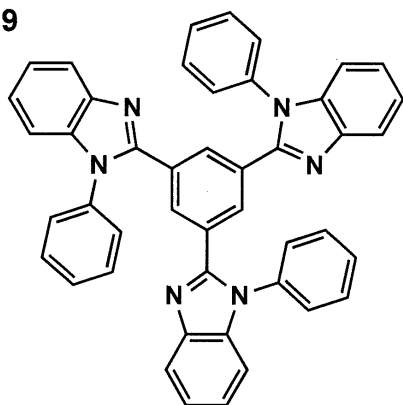


40

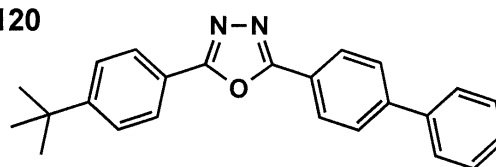
【0189】

【化 4 5】

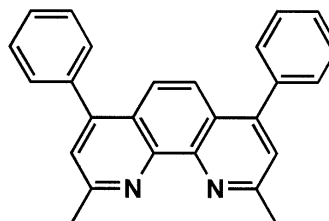
119



120

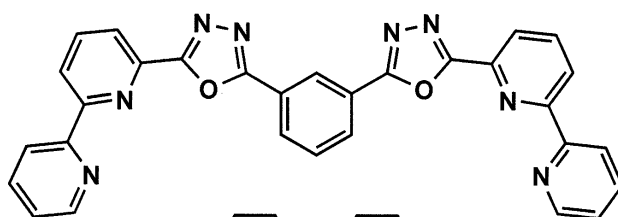


121

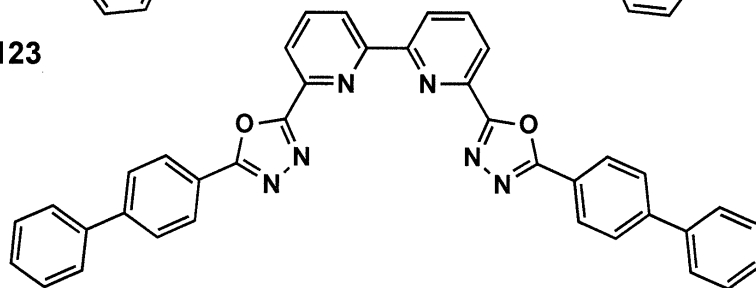


10

122

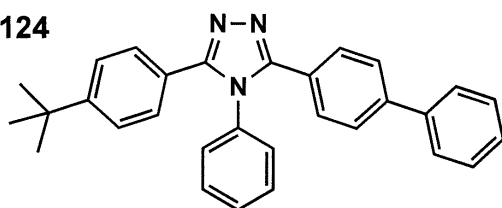


123

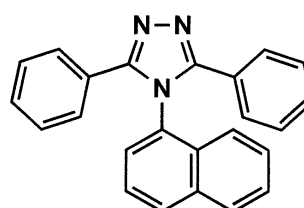


20

124

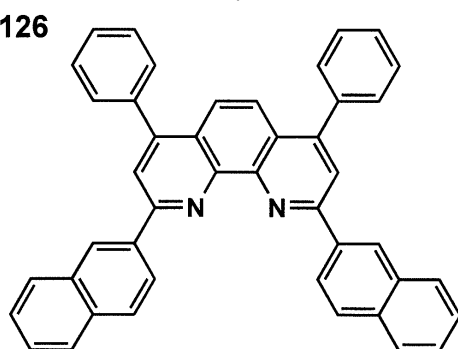


125

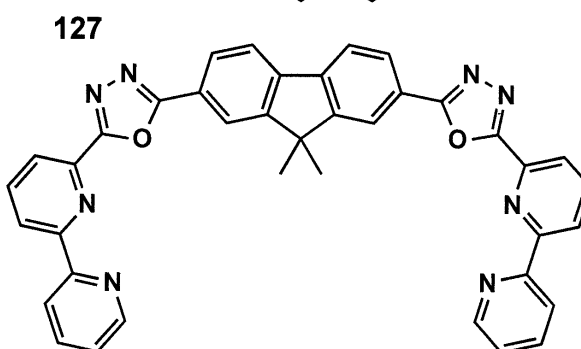


30

126

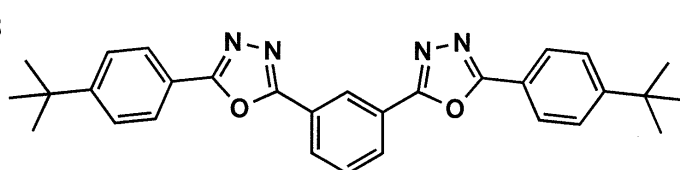


127



40

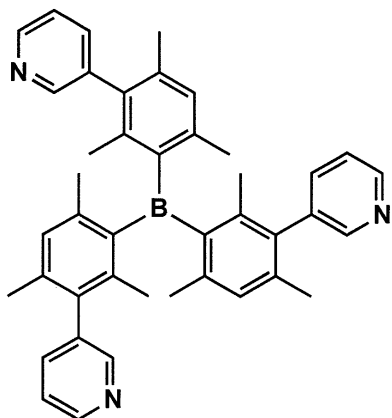
128



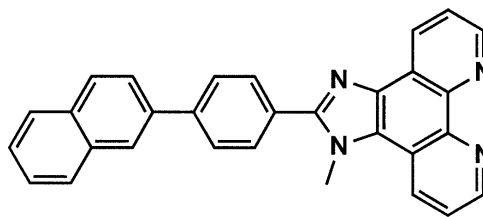
【0190】

【化 4 6】

129

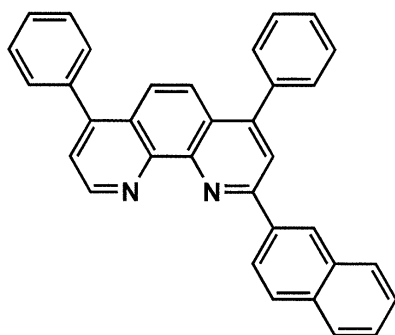


130

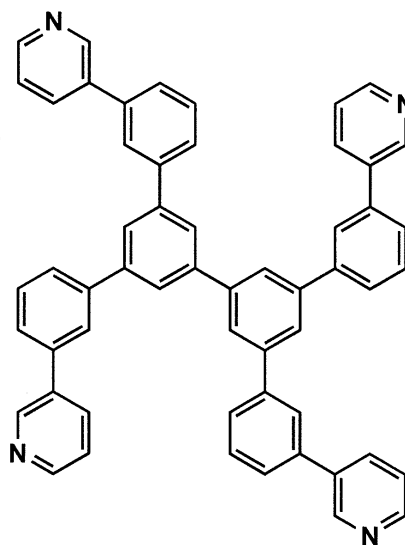


10

131

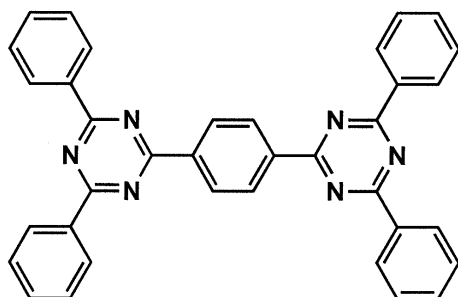


132

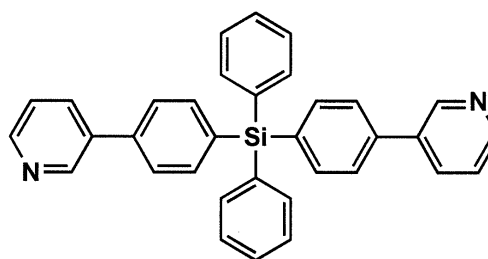


20

133



134



30

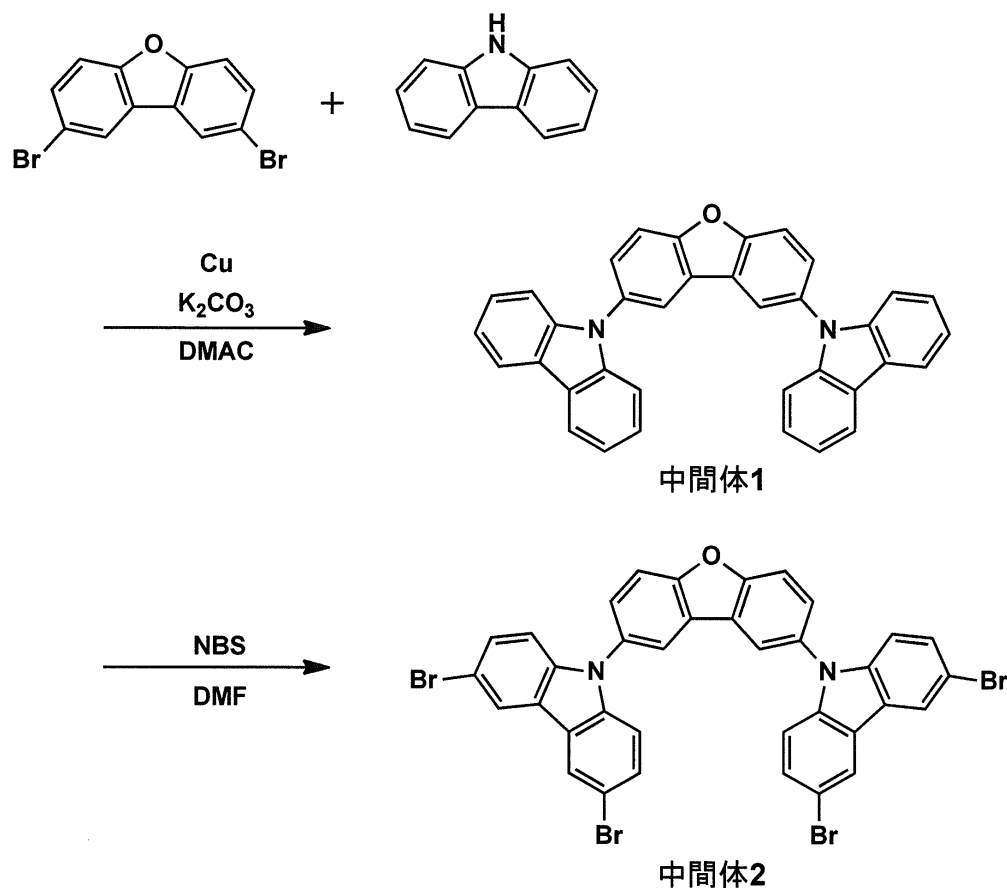
【0191】

〔窒素含有化合物の合成例〕

以下に代表的な化合物の合成例として、化合物 5 の具体的な合成例を示すが、これに限定されない。

【0192】

【化 4 7】



【0193】

工程 1：（中間体 1 の合成）

窒素雰囲気下、2, 8-ジブロモジベンゾフラン（1. 0 モル）、カルバゾール（2. 0 モル）、銅粉末（3. 0 モル）、炭酸カリウム（1. 5 モル）を、DMAc（ジメチルアセトアミド）300 ml 中で混合し、130℃で24時間攪拌した。これによって得た反応液を室温まで冷却後、トルエン1 Lを加え、蒸留水で3回洗浄し、減圧雰囲気下において洗浄物から溶媒を留去し、その残渣をシリカゲルフラッシュクロマトグラフィー（n-ヘプタン：トルエン＝4：1～3：1）にて精製し、中間体1を収率85%で得た。

【0194】

工程2：(中間体2の合成)

室温、大気下で中間体1(0.5モル)をDMF(ジメチルホルムアミド)100mlに溶解し、NBS(N-ブROMOコハク酸イミド)(2.0モル)を加え、一晩室温で撹拌した。得られた沈殿を濾過し、メタノールで洗浄し、中間体2を収率92%で得た。

【0195】

工程3：(化合物5の合成)

窒素雰囲気下、中間体2(0.25モル)、2-フェニルピリジン(1.0モル)、ルテニウム錯体 $[(\eta^6-C_6H_6)RuCl_2]_2$ (0.05モル)、トリフェニルホスフィン(0.2モル)、炭酸カリウム(12モル)を、NMP(N-メチル-2-ピロリドン)3L中で混合し、140℃で一晩撹拌した。

10

【0196】

反応液を室温まで冷却後、ジクロロメタン5Lを加え、反応液を濾過した。次いで減圧雰囲気下(800Pa、80℃)において濾液から溶媒を留去し、その残渣をシリカゲルフラッシュクロマトグラフィー(CH₂Cl₂:Et₃N=20:1~10:1)にて精製した。

【0197】

減圧雰囲気下において、精製物から溶媒を留去した後、その残渣をジクロロメタンに再び溶解し、水で3回洗浄した。洗浄によって得られた物質を無水硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧雰囲気下において乾燥後の物質から溶媒を留去することにより、化合物5を収率68%で得た。

20

【0198】

[硫黄含有化合物]

下地層を構成する硫黄含有化合物は、分子内にスルフィド結合(チオエーテル結合ともいう。)、ジスルフィド結合、メルカプト基、スルホン基、チオカルボニル結合等を有していればよく、特に、スルフィド結合、メルカプト基であることが好ましい。

【0199】

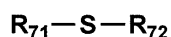
具体的には、下記一般式(7)~一般式(10)で表される硫黄含有化合物を挙げることができる。

【0200】

30

【化48】

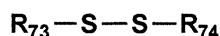
一般式(7)



【0201】

【化49】

一般式(8)

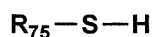


40

【0202】

【化50】

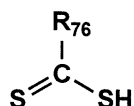
一般式(9)



【0203】

【化 5 1】

一般式(10)



【0204】

上記一般式（7）において、 R_{71} 及び R_{72} は、各々置換基を表す。

【0205】

R_{71} 及び R_{72} で表される置換基としては、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、芳香族複素環基、複素環基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリーロキシ基等が挙げられる。 10

【0206】

上記一般式（8）において、 R_{73} 及び R_{74} は、置換基を表す。

【0207】

R_{73} 及び R_{74} で表される置換基としては、 R_{71} 及び R_{72} と同様の置換基が挙げられる。

【0208】

上記一般式（9）において、 R_{75} は、置換基を表す。

【0209】

R_{75} で表される置換基としては、 R_{71} 及び R_{72} と同様の置換基が挙げられる。 20

【0210】

上記一般式（10）において、 R_{76} は、置換基を表す。

【0211】

R_{76} で表される置換基としては、 R_{71} 及び R_{72} と同様の置換基が挙げられる。

【0212】

以下に、本発明に係る下地層に適用可能な硫黄原子を含有する有機化合物の具体例を挙げる。

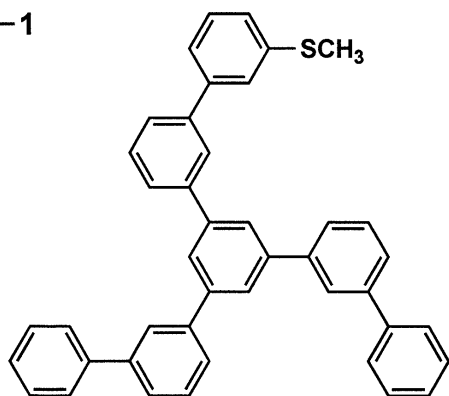
【0213】

また、一般式（7）で表される化合物の具体例としては、下記 1-1 ～ 1-9 が挙げられる。 30

【0214】

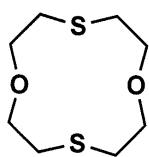
【化 5 2】

1-1

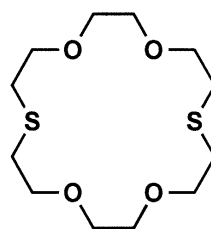


10

1-2

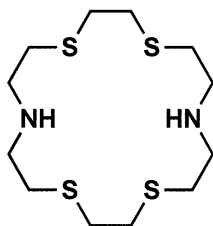


1-3

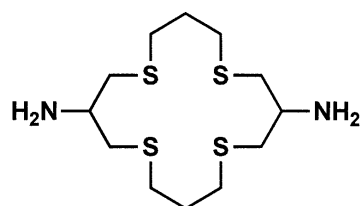


20

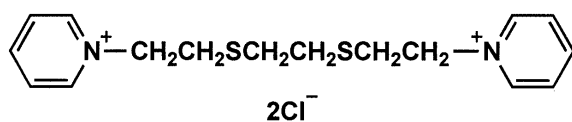
1-4



1-5



1-6

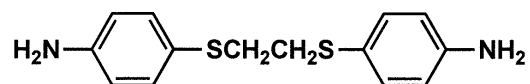


1-7

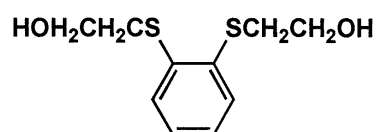


30

1-8



1-9



【0 2 1 5】

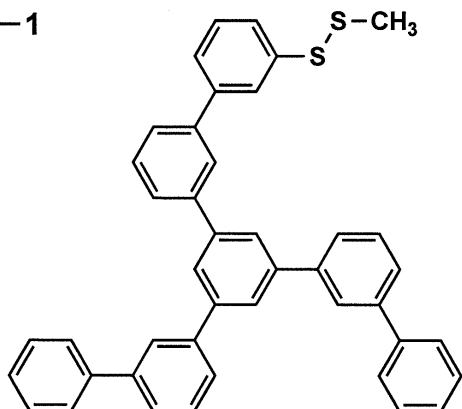
また、一般式（8）で表される化合物の具体例としては、下記 2-1 ~ 2-11 が挙げられる。

40

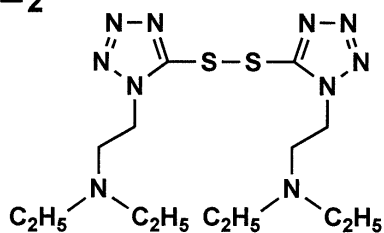
【0 2 1 6】

【化 5 3】

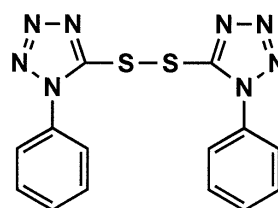
2-1



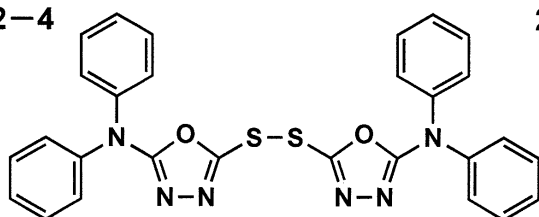
2-2



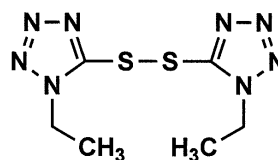
2-3



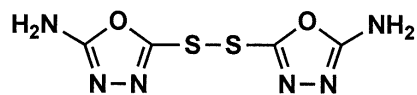
2-4



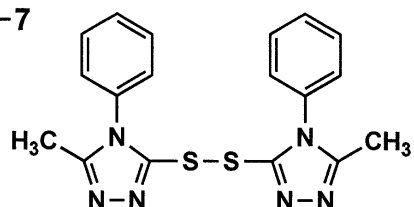
2-5



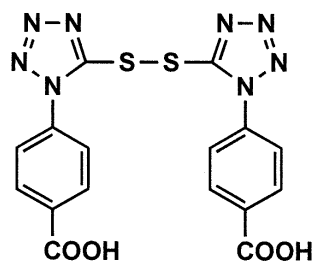
2-6



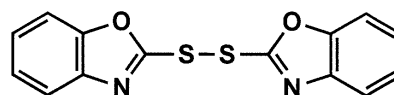
2-7



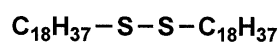
2-8



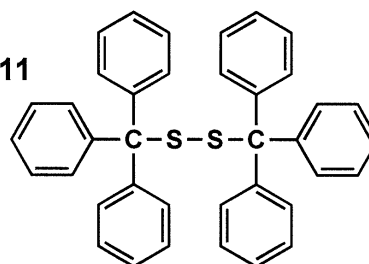
2-9



2-10



2-11



【0 2 1 7】

また、一般式（9）で表される化合物の具体例としては、下記 3-1～3-23 が挙げられる。

【0 2 1 8】

10

20

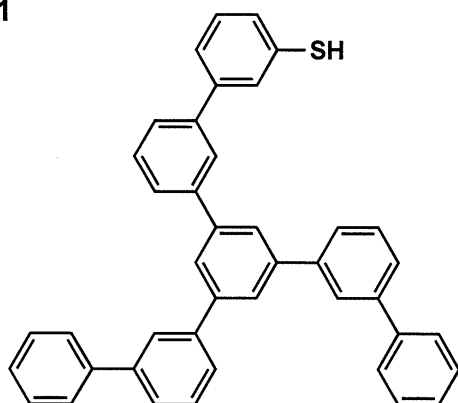
30

40

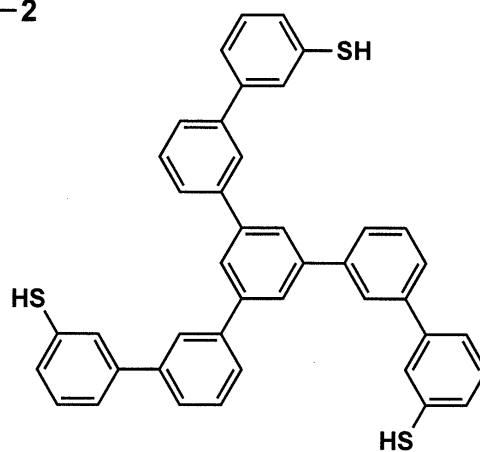
50

【化 5 4】

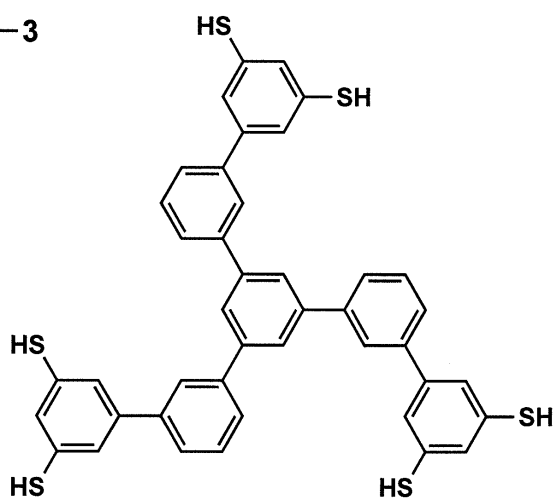
3-1



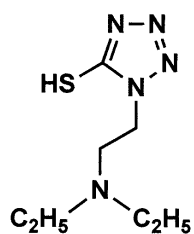
3-2



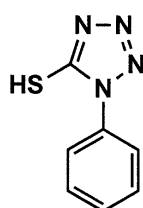
3-3



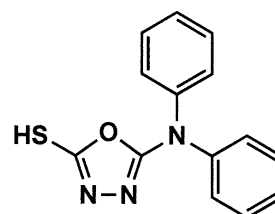
3-4



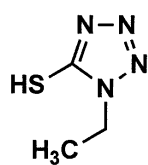
3-5



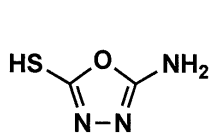
3-6



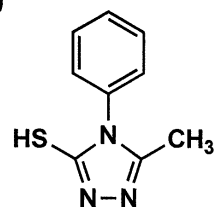
3-7



3-8



3-9



【 0 2 1 9】

10

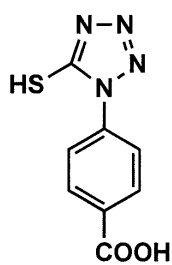
20

30

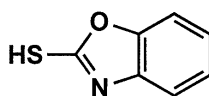
40

【化 5 5】

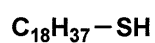
3-10



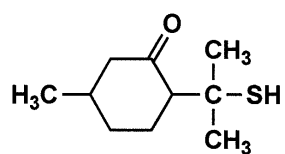
3-11



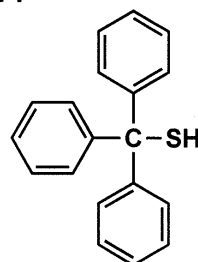
3-12



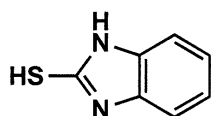
3-13



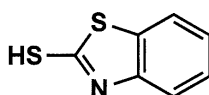
3-14



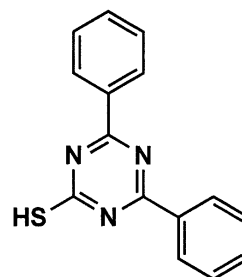
3-15



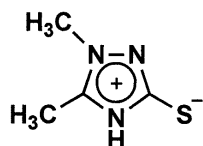
3-16



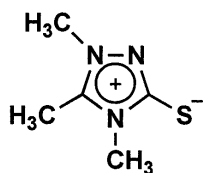
3-17



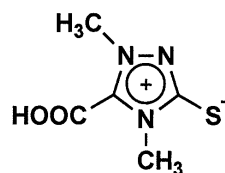
3-18



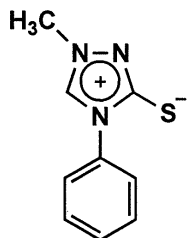
3-19



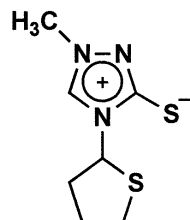
3-20



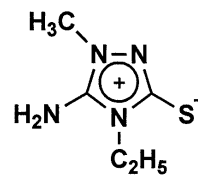
3-21



3-22



3-23



【 0 2 2 0 】

また、一般式 (10) で表される化合物の具体例としては、下記 4-1 が挙げられる。

【 0 2 2 1 】

10

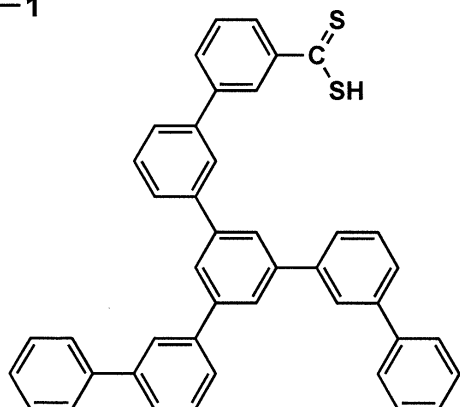
20

30

40

【化 5 6】

4-1



10

【0 2 2 2】

〔下地層の成膜方法〕

以上のような下地層の成膜方法としては、塗布法、インクジェット法、コーティング法、ディップ法などのウェットプロセスを用いる方法や、蒸着法（抵抗加熱法、E B法など）、スパッタ法、C V D法などのドライプロセスを用いる方法などが挙げられる。なかでも蒸着法が好ましく適用される。

【0 2 2 3】

20

特に、複数の化合物を用いて下地層を成膜する場合であれば、複数の蒸着源から複数の化合物を同時に供給する共蒸着が適用される。また化合物として高分子材料を用いる場合であれば、塗布法が好ましく適用される。この場合、化合物を溶媒に溶解させた塗布液を用いる。化合物を溶解させる溶媒が限定されることはない。さらに、複数の化合物を用いて下地層を成膜する場合であれば、複数の化合物を溶解させることが可能な溶媒を用いて塗布液を調製すれば良い。

【0 2 2 4】

下地層の層厚の上限としては、5 0 n m未満であることが好ましく、3 0 n m未満であることがより好ましく、1 0 n m未満であることが更に好ましく、5 n m未満であることが特に好ましい。層厚を5 0 n m未満とすることにより、光学的ロスをも最小限に抑えられる。一方、層厚の下限としては、0 . 0 5 n m以上であることが好ましく、0 . 1 n m以上であることがより好ましく、0 . 3 n m以上であることが特に好ましい。層厚を0 . 0 5 n m以上とすることにより、下地層の成膜を均一とし、その効果（銀の凝集抑制）を均一とすることができる。

30

【0 2 2 5】

〔有機機能層〕

次いで、各有機機能層について、電荷注入層、発光層、正孔輸送層、電子輸送層及び阻止層の順に説明する。

【0 2 2 6】

（電荷注入層）

本発明において、電荷注入層は、駆動電圧低下や発光輝度向上のために、電極と発光層の間に設けられる層のことで、「有機E L素子とその工業化最前線（1 9 9 8年1 1月3 0日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（1 2 3～1 6 6頁）にその詳細が記載されており、正孔注入層と電子注入層とがある。

40

【0 2 2 7】

電荷注入層としては、正孔注入層であれば、陽極と発光層又は正孔輸送層との間、電子注入層であれば陰極と発光層又は電子輸送層との間に存在させることができる。

【0 2 2 8】

本発明に係る正孔注入層は、駆動電圧低下や発光輝度向上のために、透明電極である陽極に隣接して配置される層であり、「有機E L素子とその工業化最前線（1 9 9 8年1 1

50

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。

【0229】

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、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、ピラズロン誘導体、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、ポ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(ポリエチレンジオキシチオフェン):PSS(ポリスチレンスルホン酸)、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。

10

【0230】

ポリアリールアミン誘導体としては、 α -NPD(4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル)に代表されるベンジジン型や、MTDATA(4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン)に代表されるスターバースト型、ポ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。

20

【0231】

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。

【0232】

電子注入層は、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あり、陰極が本発明に係る透明電極で構成されている場合には、当該透明電極に隣接して設けられ、「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。

30

【0233】

電子注入層は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、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金属ハライド層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物層、酸化モリブデン、酸化アルミニウム等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。

40

【0234】

電子注入層はごく薄い膜であることが望ましく、構成材料にもよるが、その層厚は0.1~10 μ mの範囲が好ましい。

【0235】

(発光層)

本発明の有機EL素子の有機機能層ユニットを構成する発光層は、発光材料としてリン光発光材料、又は蛍光発光材料が含有されている構成が好ましい。

【0236】

この発光層は、電極又は電子輸送層から注入された電子と、正孔輸送層から注入された正孔とが再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と

50

隣接する層との界面であってもよい。

【0237】

このような発光層としては、含まれる発光材料が発光要件を満たしていれば、その構成には特に制限はない。また、同一の発光スペクトルや発光極大波長を有する層が複数層であってもよい。この場合、各発光層間には非発光性の中間層を有していることが好ましい。

【0238】

発光層の厚さの総和は、1～100nmの範囲内にすることが好ましく、より低い駆動電圧を得ることができることから1～30nmの範囲内がさらに好ましい。なお、発光層の厚さの総和とは、発光層間に非発光性の中間層が存在する場合には、当該中間層も含む厚さである。

10

【0239】

本発明においては、発光層の厚さとしては、1～50nmの範囲内に調整することが好ましく、さらに好ましくは1～20nmの範囲内に調整することがより好ましい。

【0240】

以上のような発光層は、後述する発光材料やホスト化合物を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法（ラングミュア・プロジェクト、Langmuir-Blodgett法）及びインクジェット法等の公知の方法により形成することができる。

【0241】

また発光層は、複数の発光材料を混合してもよく、リン光発光材料と蛍光発光材料とを同一発光層中に混合して用いてもよい。発光層の構成としては、ホスト化合物及び発光材料を含有し、発光材料より発光させることが好ましい。

20

【0242】

〈ホスト化合物〉

発光層に含有されるホスト化合物としては、室温（25℃）におけるリン光発光のリン光量子収率が0.1未満の化合物が好ましい。さらにリン光量子収率が0.01未満であることが好ましい。また、発光層に含有される化合物の中で、その層中での体積比が50%以上であることが好ましい。

【0243】

ホスト化合物としては、公知のホスト化合物を単独で用いてもよく、あるいは、複数種のホスト化合物を用いてもよい。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、有機電界発光素子を高効率化することができる。また、後述する発光材料を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。

30

【0244】

発光層に用いられるホスト化合物としては、従来公知の低分子化合物でも、繰り返し単位をもつ高分子化合物でもよく、ビニル基やエポキシ基のような重合性基を有する低分子化合物（蒸着重合性ホスト化合物）でもよい。

【0245】

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、発光の長波長化を防ぎ、かつ高T_g（ガラス転移点）化合物が好ましい。ここでいうガラス転移点（T_g）とは、DSC（Differential Scanning Calorimetry：示差走査熱量法）を用いて、JIS-K-7121に準拠した方法により求められる値である。

40

【0246】

本発明に適用可能なホスト化合物としては、例えば、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2

50

002-334789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2005/238919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、EP第2034538号明細書等に記載されている化合物を挙げることができる。

10

20

【0247】

〈発光材料〉

本発明で用いることのできる発光材料としては、リン光発光材料及び蛍光発光材料が挙げられる。

【0248】

〈リン光発光材料〉

リン光発光材料とは、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。

【0249】

上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光I I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、本発明においてリン光発光材料を用いる場合、任意の溶媒のいずれかにおいて、上記リン光量子収率として0.01以上が達成されればよい。

30

【0250】

リン光発光材料の発光の原理としては、二つの方法が挙げられる。一つの方法は、キャリアが輸送されるホスト化合物上で、キャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光発光材料に移動させることでリン光発光材料からの発光を得るというエネルギー移動型である。もう一つの方法は、リン光発光材料がキャリアトラップとなり、リン光発光材料上でキャリアの再結合が生じ、リン光発光材料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、リン光発光材料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となる。

40

【0251】

リン光発光材料は、一般的な有機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が、好ましくは元素の周期表で8～10族の金属を含有する錯体系化合物であり、さらに好ましくはイリジウム化合物、オスミウム化合物、白金化合物（白金錯体系化合物）又は希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

【0252】

50

本発明においては、少なくとも一つの発光層が、二種以上のリン光発光材料が含有されていてもよく、発光層におけるリン光発光材料の濃度比が発光層の厚さ方向で変化している態様であってもよい。

【0253】

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

【0254】

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2006835469号明細書、米国特許公開第20060202194号明細書、米国特許公開第20070087321号明細書、米国特許公開第20050244673号明細書等に記載の化合物を挙げることができる。

10

【0255】

また、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20090108737号明細書、米国特許公開第20090039776号、米国特許第6921915号、米国特許第6687266号明細書、米国特許公開第20070190359号明細書、米国特許公開第20060008670号明細書、米国特許公開第20090165846号明細書、米国特許公開第20080015355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20060263635号明細書、米国特許公開第20030138657号明細書、米国特許公開第20030152802号明細書、米国特許第7090928号明細書等に記載の化合物を挙げることができる。

20

30

【0256】

また、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2002/002714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20050260441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20070190359号明細書、米国特許公開第20080297033号明細書、米国特許第7338722号明細書、米国特許公開第20020134984号明細書、米国特許第7279704号明細書、米国特許公開第2006098120号明細書、米国特許公開第2006103874号明細書等に記載の化合物も挙げることができる。

40

【0257】

さらには、国際公開第2005076380号、国際公開第2010032663号、国際公開第2008140115号、国際公開第2007052431号、国際公開第2

50

011134013号、国際公開第2011157339号、国際公開第2010086089号、国際公開第2009113646号、国際公開第2012020327号、国際公開第2011051404号、国際公開第2011004639号、国際公開第2011073149号、特開2012-069737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。

【0258】

本発明においては、好ましいリン光発光材料としては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、金属-硫黄結合の少なくとも1つの配位様式を含む錯体が好ましい。

10

【0259】

上記説明したリン光発光材料は、例えば、Organic Letter誌、vol 3、No. 16、2579~2581頁(2001)、Inorganic Chemistry, 第30巻、第8号、1685~1687頁(1991年)、J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304頁(2001年)、Inorganic Chemistry, 第40巻、第7号、1704~1711頁(2001年)、Inorganic Chemistry, 第41巻、第12号、3055~3066頁(2002年)、New Journal of Chemistry., 第26巻、1171頁(2002年)、European Journal of Organic Chemistry, 第4巻、695~709頁(2004年)、さらにこれらの文献中の参考文献等に記載されている方法を適用することにより合成できる。

20

【0260】

〈蛍光発光材料〉

蛍光発光材料としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素又は希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

【0261】

(正孔輸送層)

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層及び電子阻止層も正孔輸送層の機能を有する。正孔輸送層は単層又は複数層設けることができる。

30

【0262】

正孔輸送材料としては、正孔の注入又は輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、導電性高分子オリゴマー及びチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

40

【0263】

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

【0264】

芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニル、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン(略称: TPD)、2, 2'-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)プロパン、1, 1'-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N, N, N', N'-テト

50

ラーp-トリル-4, 4'-ジアミノビフェニル、1, 1'-ビス(4-ジ-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン、ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン、ビス(4-ジ-トリルアミノフェニル)フェニルメタン、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニル、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル、N, N, N-トリ(p-トリル)アミン、4-(ジ-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-トリルアミノ)スチリル]スチルベン、4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン、3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン及びN-フェニルカルバゾール等が挙げられる。

10

【0265】

さらには、米国特許第5061569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:NPD)、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが三つスターバースト型に連結された4, 4', 4"-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(略称:MTDATA)等が挙げられる。

【0266】

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

20

【0267】

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

【0268】

正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法及びLB法(ラングミュア・ブロッジェット、Langmuir Blodgett法)等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の層厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5~200nmの範囲である。この正孔輸送層は、上記材料の一種又は二種以上からなる一層構造であってもよい。

30

【0269】

また、正孔輸送層の材料に不純物をドーピングすることにより、p性を高くすることもできる。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号公報及びJ. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。

【0270】

このように、正孔輸送層のp性を高くすると、より低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

40

【0271】

(電子輸送層)

電子輸送層は、電子を輸送する機能を有する材料から構成され、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は、単層構造又は複数層の積層構造として設けることができる。

【0272】

単層構造の電子輸送層及び積層構造の電子輸送層において、発光層に隣接する層部分を構成する電子輸送材料(正孔阻止材料を兼ねる)としては、カソード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良い。このような材料としては、従来公知の化合

50

物の中から任意のものを選択して用いることができる。例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン、アントロン誘導体及びオキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送層の材料として用いることができる。さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した高分子材料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。

【0273】

また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(略称: Alq_3)、トリス(5,7-ジクロロ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5,7-ジブromo-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(略称: 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、電子輸送層の材料として用いることができる。

【0274】

その他、メタルフリー又はメタルフタロシアニン若しく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、電子輸送層の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も例示されるジスチリルピラジン誘導体も電子輸送層の材料として用いることができるし、正孔注入層及び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層の材料として用いることができる。

【0275】

電子輸送層は、上記材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法及びLB法等の公知の方法により、薄膜化することで形成することができる。電子輸送層の層厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5~200nmの範囲内である。電子輸送層は上記材料の一種又は二種以上からなる単一構造であってもよい。

【0276】

また、電子輸送層に不純物をドーピングし、n性を高くすることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、同10-270172号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報及びJ. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。さらに、電子輸送層には、カリウムやカリウム化合物などを含有させることが好ましい。カリウム化合物としては、例えば、フッ化カリウム等を用いることができる。このように、電子輸送層のn性を高くすることにより、より低消費電力の有機EL素子を得ることができる。

【0277】

また、電子輸送層の材料(電子輸送性化合物)として、上述した中間層を構成する材料と同様のものを用いても良い。これは、電子注入層を兼ねた電子輸送層であっても同様であり、上述した中間層を構成する材料と同様のものを用いても良い。

【0278】

(阻止層)

阻止層としては、正孔阻止層及び電子阻止層が挙げられ、上記説明した有機機能層ユニット3の各構成層の他に、必要に応じて設けられる層である。例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の237頁等に記載されている正孔阻止(ホールブロック)層等を挙げることができる。

【0279】

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。正孔阻止層は、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を

輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、電子輸送層の構成を必要に応じて、正孔阻止層として用いることができる。正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられていることが好ましい。

【0280】

一方、電子阻止層とは、広い意味では、正孔輸送層の機能を有する。電子阻止層は、正孔を輸送する機能を有しつつ、電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。本発明に適用す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、さらに好ましくは5～30nmの範囲である。

10

【0281】

〔透明封止部材〕

本発明の有機EL素子を封止するのに用いられる封止手段としては、例えば、封止部材E1と透明電極D1とを接着剤で接着する方法を挙げることができる。

【0282】

透明封止部材としては、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い。凹板状でも、平板状でもよいが平板状であることが積層工程において位置合わせを容易にできるので好ましい。また透明であることが好ましい。さらに、前記説明した透明基板を透明封止部材として用いても良い。

20

【0283】

本発明に適用可能な透明封止部材としては、例えば、ガラス板、ポリマー板、フィルム、金属板、フィルム等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属又は合金が挙げられる。

【0284】

透明封止部材としては、有機EL素子を薄膜化することできる観点から、ポリマーフィルムを好ましく使用することができる。さらに、ポリマーフィルムは、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された温度 $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $90 \pm 2\% \text{RH}$ における水蒸気透過度が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下であることが好ましく、さらには、JIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $1 \times 10^{-3} \text{ ml/m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm}$ （1 atmは、 $1.01325 \times 10^5 \text{ Pa}$ である）以下であって、温度 $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $90 \pm 2\% \text{RH}$ における水蒸気透過度が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下であることが好ましい。

30

【0285】

透明封止部材を凹状に加工するのは、サンドブラスト加工又は化学エッチング加工等が使われる。接着剤としては、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等の反応性ビニル基を有する光硬化及び熱硬化型接着剤並びに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、ポリエステル及び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。

40

【0286】

なお、有機EL素子が熱処理により劣化する場合があるので、室温から 80°C までに接着硬化できる接着剤が好ましい。また、接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。封止部材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

50

ように印刷してもよい。

【0287】

封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相及び液相では窒素、アルゴン等の不活性気体やフッ化炭化水素、シリコンオイルのような不活性液体を注入することが好ましい。また、封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙を真空とすることや、間隙に吸湿性化合物を封入することもできる。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、酸化マグネシウム又は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、硫酸マグネシウム又は硫酸コバルト等）、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、ヨウ化バリウム又はヨウ化マグネシウム等）及び過塩素酸類（例えば、過塩素酸バリウム又は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物が好適に用いられる。

10

【0288】

《発光パネル》

本発明に係る発光パネルは、透明電極を含む一对の電極と有機機能層を備えた有機EL素子を構成単位とする発光ユニットを複数積層してなり、かつ当該複数の発光ユニットが、個別に又は同時に、電氣的に駆動可能である。具体的には各有機EL素子の陽極及び陰極に導電性材料（部材）が接続され、更に、配線基板等に接続された、それ自体が独立の機能を有する実装体のことをいう。

20

【0289】

発光パネルには、偏光板、ハーフミラーあるいは黒色フィルター等を具備することにより、非発光時に黒色となることから好ましい。

【0290】

〈偏光部材〉

本発明の有機ELモジュールを構成する偏光部材としては、市販の偏光板又は円偏光板が挙げられる。

【0291】

偏光板の主たる構成要素である偏光膜とは、一定方向の偏波面の光だけを通す素子であり、代表的なものとして、ポリビニルアルコール系偏光フィルムがある。これは、主に、ポリビニルアルコール系フィルムにヨウ素を染色させたものと2色性染料を染色させたものとがある。偏光膜は、ポリビニルアルコール水溶液を製膜し、これを一軸延伸させて染色するか、染色した後一軸延伸してから、好ましくはホウ素化合物で耐久性処理を行ったものが用いられている。偏光膜の厚さとしては、5～30 μmの範囲内、好ましくは8～15 μmの範囲内である偏光膜が好ましく用いられており、本発明においては、このような偏光膜も好適に用いることができる。偏光板により入射した光の電極による反射を防止することができる。

30

【0292】

また、市販の偏光板保護フィルムを用いることも好ましく、具体的には、KC8UX2MW、KC4UX、KC5UX、KC4UY、KC8UY、KC12UR、KC4UEW、KC8UCR-3、KC8UCR-4、KC8UCR-5、KC4FR-1、KC4FR-2、KC8UE、KC4UE（以上、コニカミノルタ（株）製）等が挙げられる。

40

【0293】

偏光部材と支持基板とを貼り合わせるために用いられる粘着剤は、光学的に透明であることはもとより、適度な粘弾性や粘着特性を示すものが好ましい。

【0294】

具体的には、アクリル系共重合体やエポキシ系樹脂、ポリウレタン、シリコン系ポリマー、ポリエーテル、ブチラール系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリビニルアルコール系樹脂、合成ゴム等が挙げられる。中でも、アクリル系共重合体は、最も粘着物性を制御しやすく、かつ透明性や耐候性、耐久性などに優れていることから好ましく用いることができ

50

る。

【0295】

これら粘着剤は、基板上に塗設後、乾燥法、化学硬化法、熱硬化法、熱熔融法、光硬化法等により膜形成させ、硬化させることができる。

【実施例】

【0296】

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「%」の表示を用いるが、特に断りがない限り「質量%」を表す。

【0297】

〔参考例1〕

《2種の発光ユニットを有する発光パネルの作製》

図6の構成で示される発光パネル10を作製した。

【0298】

〔有機EL素子10の作製〕

下記の方法に従って、図6の構成で示される第1発光ユニット(10-1U)を構成する有機EL素子1を作製した。

【0299】

(透明基板の準備)

厚さ50 μ mのポリエチレンテレフタレートフィルム(帝人デュポンフィルム株式会社製、極高透明品PET Type K)を透明基板として準備した。

【0300】

下記ポリシラザン含有液を、ワイヤレスバーにて、乾燥後の平均の厚さが300nmとなるように塗布し、温度85 $^{\circ}$ C、湿度55%RHの雰囲気下で1分間加熱処理して乾燥させた。次いで、温度25 $^{\circ}$ C、湿度10%RH(露点温度-8 $^{\circ}$ C)の雰囲気下に10分間保持し、除湿処理を行って、透明基板上にポリシラザン含有層を形成した。

【0301】

次に、ポリシラザン含有層を形成した透明基板を、エキシマ照射装置MEL-M-1-200(株式会社エム・ディ・コム製)の稼働ステージ上に固定し、下記の改質処理条件1で改質処理を行い、300nmからなるポリシラザン改質層(不図示)を形成し、ガスバリアー層を設けた透明基板1-1を得た。

【0302】

〈ポリシラザン含有液〉

ポリシラザン含有液としては、パーヒドロポリシラザン(アクアミカ NN120-10、無触媒タイプ、AZエレクトロニックマテリアルズ(株)製)の10質量%ジブチルエーテル溶液を調製した。

【0303】

〈改質処理条件1〉

照射波長: 172nm

ランプ封入ガス: Xe

エキシマランプ光強度: 130mW/cm² (172nm)

試料と光源の距離: 1mm

ステージ加熱温度: 70 $^{\circ}$ C

照射装置内の酸素濃度: 0.5%

エキシマランプ照射時間: 5秒

(下地層1-2の形成)

次に、透明基板1-1を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定した。また、窒素含有化合物である例示化合物No. 7をタンタル製の抵抗加熱ボートに入れた。これらの基板ホルダーと抵抗加熱ボートとを真空蒸着装置の第1真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに銀(Ag)を入れ、真空蒸着装置の第2真空槽内に取り付

10

20

30

40

50

けた。

【0304】

次いで、第1真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、化合物の入った加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で基板上に例示化合物No. 7で構成された厚さ 5 nm の下地層1-2を形成した。

【0305】

（透明電極1-3の形成）

次に、下地層1-2まで形成した基板を真空のまま第2真空槽に移し、第2真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、銀の入った加熱ボートに通電して加熱した。これにより、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で、厚さ 9 nm の銀からなる、発光面積が $30 \times 30 \text{ mm}$ の透明電極1-3を形成した。

10

【0306】

（正孔輸送層1-4～電子輸送層1-6の形成）

有機機能性ユニットC1に対応する正孔輸送層1-4～電子輸送層1-6を以下の順で形成した。

【0307】

銀からなる透明電極1-3を有する透明基板1-1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1-1を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定した。

【0308】

真空蒸着装置内の蒸着用つばの各々に、各層の構成材料を、各々素子の作製に最適量を充填した。蒸着用つば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。

20

【0309】

〈正孔輸送層1-4の形成〉

真空度 1×10^{-4} Paまで減圧した後、化合物M-2の入った蒸着用つばに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/秒 で透明支持基板に蒸着し、厚さ 40 nm の正孔輸送層を形成した。

【0310】

〈蛍光発光層1-5aの形成〉

次いで、化合物BD-1及び化合物H-1を用い、化合物BD-1が5容積%、化合物H-1が95容積%になるように蒸着速度 0.1 nm/秒 で共蒸着し、厚さ 15 nm の青色発光を呈する蛍光発光層1-5aを形成した。

30

【0311】

〈リン光発光層1-5bの形成〉

次いで、化合物GD-1、化合物RD-1及び化合物H-2を用い、化合物GD-1が17容積%、RD-1が0.8容積%、化合物H-2が82.2容積%となるように蒸着速度 0.1 nm/秒 で共蒸着し、厚さ 15 nm の黄色を呈するリン光発光層1-5bを形成した。

【0312】

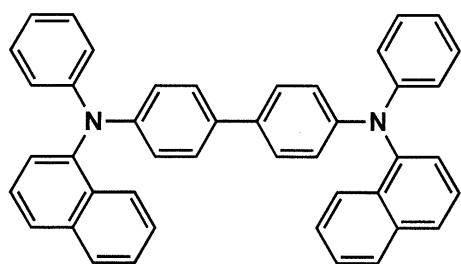
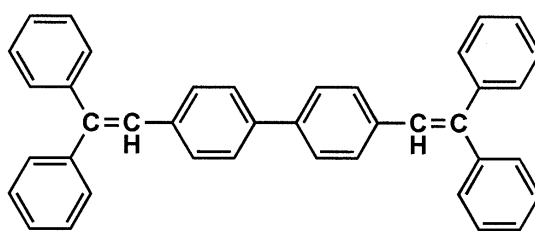
〈電子輸送層1-6の形成〉

その後、化合物E-1を蒸着速度 0.1 nm/秒 で蒸着し、厚さ 30 nm の電子輸送層1-6を形成した。

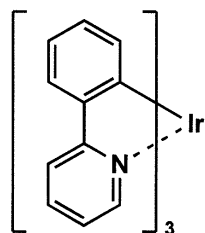
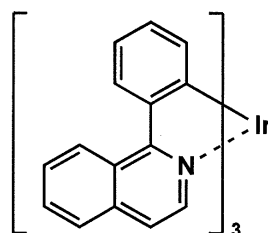
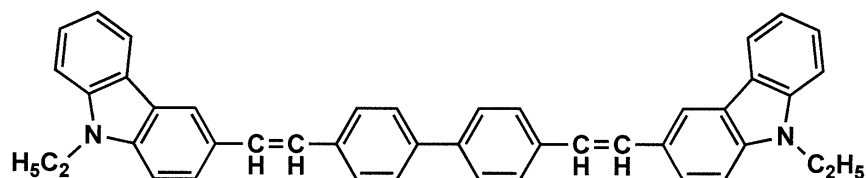
40

【0313】

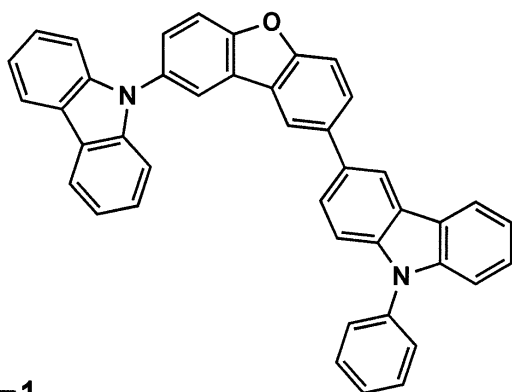
【化 5 7】

M-2**BD-1**

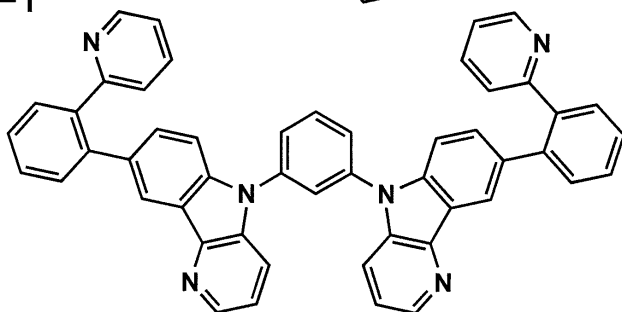
10

GD-1**RD-1****H-1**

20

H-2

30

E-1

40

【0314】

(LiF層1-7の形成)

さらに、LiFを厚さ1.5nmとなるように蒸着して、電子注入層であるLiF層1-7を形成した。

【0315】

50

(A1層1-8の形成)

さらに、蒸着法によりアルミニウム膜を厚さ10nmで蒸着して、A1層1-8を形成した。

【0316】

(透明電極1-9の形成)

A1層1-8の上に透明電極1-3と同様にして、 4×10^{-4} Paまで減圧した後、銀の入った加熱ボートを通電して加熱した。これにより、蒸着速度0.1nm/秒~0.2nm/秒で、厚さ9nmの銀からな透明電極1-9を形成した。

【0317】

(透明封止基板1-10の形成)

前記透明基板と同様に、厚さ50μmのポリエチレンテレフタレートフィルム(帝人デュポンフィルム株式会社製、極高透明品PET Type K)上に、前記と同様のポリシラザン含有液を塗布し、エキシマランプで処理してガスバリアー層を形成して、ガスバリアー層付の透明封止部材1-10を得た。

【0318】

(有機EL素子1の封止)

透明封止部材1-10の接着は、接着剤としてエポキシ系熱硬化型接着剤(巴川製紙所社製エレファンCS)を用い、酸素濃度10ppm以下、水分濃度10ppm以下のグローブボックス内で、80℃、0.04MPa荷重下、減圧(1×10^{-3} MPa以下)吸引を20秒、プレスを20秒の条件で、真空プレスした。

【0319】

その後、グローブボックス内で、110℃のホットプレート上で30分間加熱して接着層を熱硬化させ、有機EL素子1を得た。

【0320】

[紫外線照射工程]

作製した有機EL素子1に紫外線照射して第1発光ユニット(10-1U)を作製した。

【0321】

作製した有機EL素子1の封止されている側の面上に、図2(A)に対応する矢印のパターンマスク及び紫外線吸収フィルター(五鈴精工硝子株式会社製)を配置した状態で減圧密着させ、UVテスター(岩崎電気株式会社製、SUV-W151:100mW/cm²)を用いて、封止されている側から紫外線を3時間照射し、パターンニングして第1発光ユニット(10-1U)を作製した。

【0322】

なお、紫外線吸収フィルターは、320nm以下の波長成分の光透過率が50%以下のもの(カット波長:320nm)を用いた。

【0323】

[有機EL素子2の作製]

下記の方法に従って、図6の構成で示される第2発光ユニット(10-2U)を構成する有機EL素子2を作製した。

【0324】

有機EL素子1の作製と同様にして基板1-1~封止部材1-10に対応する基板2-1~封止部材2-10からなる有機EL素子を作製し、これを有機EL素子2とした。

【0325】

[紫外線照射工程]

作製した有機EL素子2に紫外線照射して第2発光ユニット(10-2U)を作製した。

【0326】

作製した有機EL素子2の封止されている側の面上に、第1発光ユニットの作製と同様にして図2(B)に対応する矢印のパターンマスク及び紫外線吸収フィルター(五鈴精工

10

20

30

40

50

硝子株式会社製)を配置した状態で減圧密着させ、UVテスター(岩崎電気株式会社製、 $UV-W151:100\text{mW}/\text{cm}^2$)を用いて、封止されている側から紫外線を3時間照射し、パターニングして第2発光ユニット(10-2U)を作製した。

【0327】

なお、紫外線吸収フィルターは、 320nm 以下の波長成分の光透過率が50%以下のもの(カット波長: 320nm)を用いた。

【0328】

〔積層工程〕

上記作製した第1発光ユニット(10-1U)の封止部材と第2発光ユニット(10-2U)を積層し、発光パネル10を作製した。具体的には、第1発光ユニットの封止部材と第2発光ユニットの基板側とを接着剤(3M社製高透明性接着剤転写テープ)を用いて接着した。

10

【0329】

《発光パネル10の評価》

このようにして作製した各発光ユニットを個別に駆動し、図2(A)及び(B)に示すような発光パターンが、形状精度よく各々発光することを確認できた。

【0330】

〔実施例2〕

《3種の発光ユニットを有する発光パネル20の作製》

図7の構成で示される発光パネル20を作製した。

20

【0331】

〔有機EL素子3の作製〕

下記の方法に従って、図7の構成で示される第1発光ユニット(20-1U)を構成する有機EL素子3を作製した。

【0332】

有機EL素子1の作製において、発光層である1-5a及び1-5bの代わりに以下のように発光層3-5Rに代え、それ以外は有機EL素子1と同様にして赤色に発光する有機EL素子3を作製した。

【0333】

(リン光発光層3-5Rの形成)

30

化合物RD-1及び化合物H-2を用い、RD-1が0.96容積%、化合物H-2が99.0容積%となるように蒸着速度 $0.1\text{nm}/\text{秒}$ で共蒸着し、厚さ 12.5nm の赤色を呈するリン光発光層3-5Rを形成した。

【0334】

〔紫外線照射工程〕

作製した有機EL素子3に紫外線照射して第1発光ユニット(20-1U)を作製した。

【0335】

作製した有機EL素子3の封止されている側の面上に、図5(A)に対応する画像から赤色成分を分解したネガマスクを減圧密着させ、UVテスター(岩崎電気株式会社製、 $UV-W151:100\text{mW}/\text{cm}^2$)を用いて、封止されている側から紫外線を3時間照射し、パターニングして第1発光ユニットを作製した。なお画像外の4隅に+印の位置合わせマークも同時にパターニングして第1発光ユニット(20-1U)を作製した。

40

【0336】

なお画像外の4隅に+印の位置合わせマークも同時にパターニングした。

【0337】

〔有機EL素子4の作製〕

下記の方法に従って、図7の構成で示される第2発光ユニット(20-2U)を構成する有機EL素子4を作製した。

【0338】

50

有機EL素子1の作製において、発光層である1-5bの層を設けなかった。青色発光層1-5aを4-5Bとして用い、それ以外は有機EL素子1と同様にして青色に発光する有機EL素子4を作製した。

【0339】

〔紫外線照射工程〕

作製した有機EL素子4に紫外線照射して第2発光ユニットを作製した。

【0340】

作製した有機EL素子4の封止されている側の面上に、図5(A)に対応する画像から青色成分を分解したネガマスクを減圧密着させ、UVテスター（岩崎電気株式会社製、SUV-W151:100mW/cm²）を用いて、封止されている側から紫外線を3時間照射し、パターニングして第2発光ユニット（20-2U）を作製した。なお画像外の4隅に+印の位置合わせマークも同時にパターニングした。

10

【0341】

〔有機EL素子5の作製〕

下記の方法に従って、図7の構成で示される第3発光ユニット（20-3U）を構成する有機EL素子5を作製した。

【0342】

有機EL素子1の作製において、発光層である1-5a及び1-5bの代わりに以下のように発光層5-5Gに代え、それ以外は有機EL素子1と同様にして緑色に発光する有機EL素子5を作製した。

20

【0343】

（リン光発光層5-5Gの形成）

化合物GD-1及び化合物H-2を用い、化合物GD-1が17.1容積%、化合物H-2が82.9容積%となるように蒸着速度0.1nm/秒で共蒸着し、厚さ14.9nmの黄色を呈するリン光発光層5-5Gを形成した。

【0344】

〔紫外線照射工程〕

作製した有機EL素子5に紫外線照射して第3発光ユニットを作製した。

【0345】

作製した有機EL素子5の封止されている側の面上に、図5(A)に対応する画像から緑色成分を分解したネガマスクを減圧密着させ、UVテスター（岩崎電気株式会社製、SUV-W151:100mW/cm²）を用いて、封止されている側から紫外線を3時間照射し、パターニングして第3発光ユニットを作製した。なお画像外の4隅に+印の位置合わせマークも同時にパターニングした。

30

【0346】

〔積層工程〕

上記作製した第1発光ユニットの封止部材と第2発光ユニットの基板。及び第2発光ユニットの封止部材と第3発光ユニットの基板を積層し、発光パネル20を作製した。具体的には、それぞれの発光ユニットを接着剤（3M社製高透明性接着剤転写テープ）を用いて接着した。このとき発光ユニットを通电しながら、4隅に設けた位置合わせ用の+マークが重なるように目視にて確認して接着した。

40

【0347】

《発光パネル20の評価》

このようにして作製した各発光ユニットを個別に駆動し、図5(R)、図5(B)及び(G)に示す発光パターンが、形状精度よく各々発光することが確認された。また、3種の発光ユニットを同時に発光させることにより図5(A)の自然画像が、形状精度よく得られることが確認された。

【0348】

また、上記作製した発光パネルの封止部材側に、偏光部材、ハーフミラー部材又は黒色フィルターを、接着剤を介して設けて、その機能を評価した結果、良好な表示性能を発現

50

することができることを確認することができた。

【符号の説明】

【0349】

1, 10, 20 発光パネル

A1、A2 基板

B1、B2 電極（陽極）

C1、C2 有機機能層ユニット

D1、D2 電極（陰極）

E1、E2 透明封止部材

1-1、2-1、3-1、4-1、5-1 基板

1-2、2-2、3-2、4-2、5-2 下地層

1-3、2-3、3-3、4-3、5-3 電極（陽極）

1-4、2-4、3-4、4-5、5-5 正孔輸送層

1-5a、1-5b、3-5R、4-5B、5-5G 発光層

1-6、2-6、3-6、4-6、5-6 電子輸送層

1-7、2-7、3-7、4-7、5-7 LiF層

1-8、2-8、3-8、4-8、5-8 Al層

1-9、2-9、3-9、4-9、5-9 電極（陰極）

1-10、2-10、3-10、4-10、5-10 封止部材

21 背景

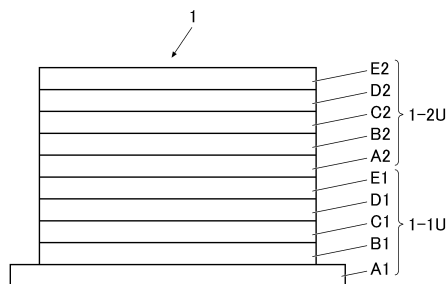
22A、22B 矢印画像

E、F 画像

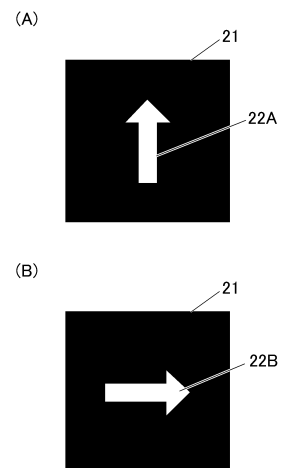
10

20

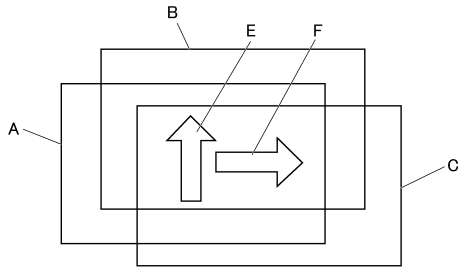
【図1】



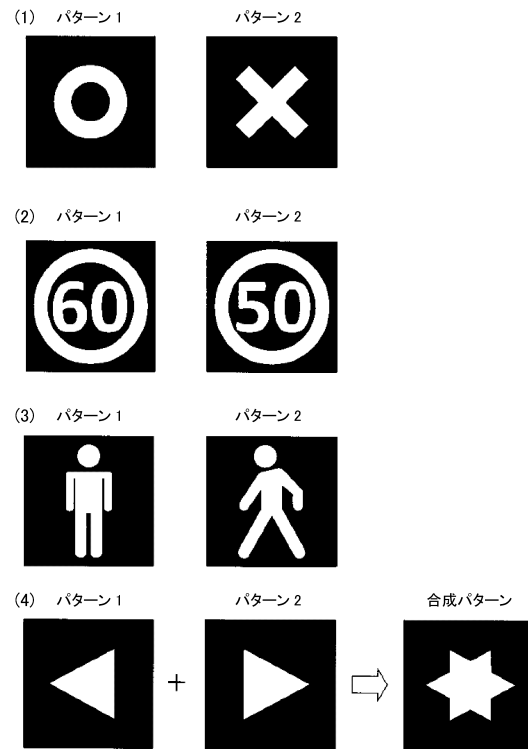
【図2】



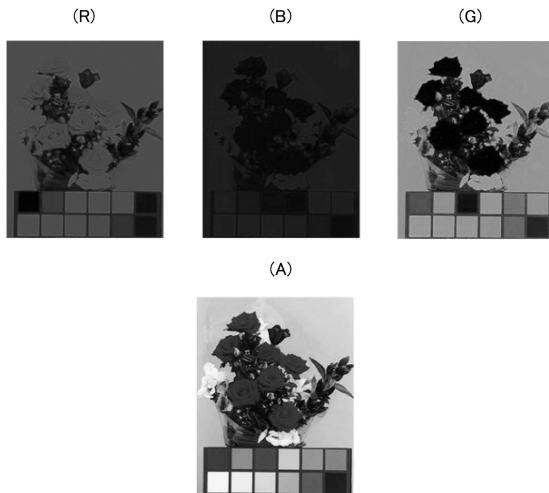
【図 3】



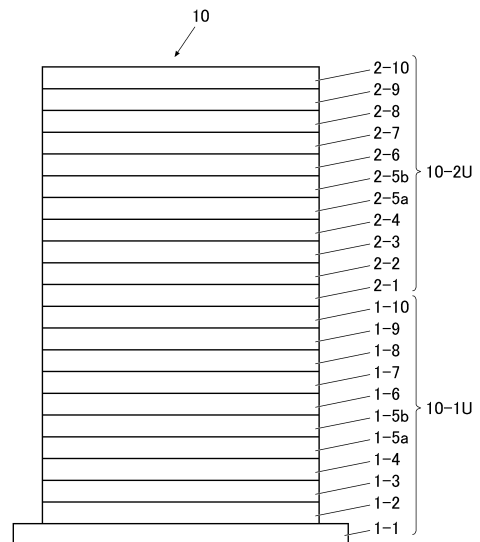
【図 4】



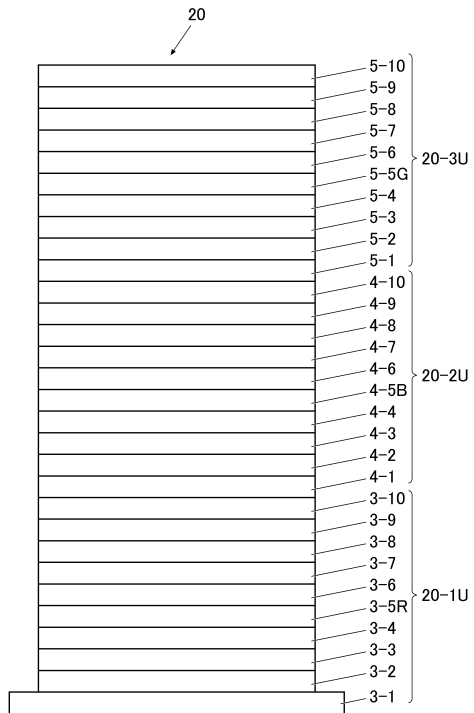
【図 5】



【図 6】



【図 7】



フロントページの続き

- (56)参考文献 特開2011-171068 (JP, A)
特開2001-076870 (JP, A)
特開平08-259938 (JP, A)
特開2011-174985 (JP, A)
特開2005-084642 (JP, A)
特開2001-291586 (JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H05B 33/10
H05B 33/12
H01L 51/50

专利名称(译)	制造发光面板的方法		
公开(公告)号	JP6179278B2	公开(公告)日	2017-08-16
申请号	JP2013178143	申请日	2013-08-29
[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	上澤邦明		
发明人	上澤 邦明		
IPC分类号	H05B33/10 H05B33/12 H01L51/50		
FI分类号	H05B33/10 H05B33/12.C H05B33/14.A H01L27/32		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/BB03 3K107/CC09 3K107/CC35 3K107/CC41 3K107/EE12 3K107/GG14 3K107/GG28		
其他公开文献	JP2015046364A		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明提供一种发光显示图案的形状精度（清晰度）优异的发光面板的制造方法，其能够切换发光图案，并且能够在同一显示区域中分别或同时显示不同的图像及其方法。一种用于根据本发明的制造发光光板的方法，所述发光单元作为构成单元有机电致发光元件，其具有一对电极和有机功能层，其包括通过层叠多个由基片上的透明电极，和多个发光单元被单独或同时充电制造可以被驾驶的发光面板的方法，将光照射到每个发光单元的有机电致发光元件以给出特定的发光图案的步骤以及层叠设置有发光图案的每个发光单元的步骤。

(19) 日本国特許庁 (JP)		(12) 特 許 公 報 (B2)		(11) 特許番号 特許第6179278号 (P6179278)	
(45) 発行日 平成29年8月16日 (2017. 8. 16)		(24) 登録日 平成29年7月28日 (2017. 7. 28)			
(51) Int. Cl.		F I			
H 0 5 B 33/10 (2006. 01)		H 0 5 B 33/10			
H 0 5 B 33/12 (2006. 01)		H 0 5 B 33/12		C	
H 0 1 L 51/50 (2006. 01)		H 0 5 B 33/14		A	
請求項の数 4 (全 85 頁)					
(21) 出願番号 特願2013-178143 (P2013-178143)		(73) 特許権者 000001270 コニカミノルタ株式会社			
(22) 出願日 平成25年8月29日 (2013. 8. 29)		(74) 代理人 110001254 東京部千代田区丸の内二丁目7番2号			
(65) 公開番号 特開2015-46364 (P2015-46364A)		(72) 発明者 上澤 邦明 東京部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			
(43) 公開日 平成27年3月12日 (2015. 3. 12)		審査官 大竹 秀紀			
審査請求日 平成27年9月25日 (2015. 9. 25)					
前置審査					
最終頁に続く					
(54) 【発明の名称】 発光パネルの製造方法					