

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2007-63496

(P2007-63496A)

(43) 公開日 平成19年3月15日(2007.3.15)

(51) Int.Cl.		F I			テーマコード (参考)
C09K 11/06	(2006.01)	C09K 11/06	660		3K007
H01L 51/50	(2006.01)	H05B 33/14		B	
		H05B 33/22		B	

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 51 頁)

(21) 出願番号	特願2005-254463 (P2005-254463)	(71) 出願人	000222118 東洋インキ製造株式会社 東京都中央区京橋2丁目3番13号
(22) 出願日	平成17年9月2日(2005.9.2)	(72) 発明者	鳥羽 泰正 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋 インキ製造株式会社内
		(72) 発明者	田中 洋明 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋 インキ製造株式会社内
		(72) 発明者	須田 康政 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋 インキ製造株式会社内
		(72) 発明者	尾立 嘉岳 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋 インキ製造株式会社内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 特により低い駆動開始電圧で駆動可能な有機 E L 素子とそれを達成しうる有機 E L 材料が求められている。Ga q3 は、その類縁体である Al q3 より駆動開始電圧が低い材料であることは既に知られているが、本発明は、より低い駆動開始電圧を与え、安定かつ安価に工業的規模で製造できる Ga q3 を提供する。

【解決手段】 常圧下、25 にて、トルエンに対する溶解度が、0.05 g / L 以下であることを特徴とするトリス(8-オキシキノリノラト)ガリウムからなる有機エレクトロルミネッセンス材料。原料として、常圧下、25 にて、トルエンに対する溶解度が、0.5 g / L より大であるトリス(8-オキシキノリノラト)ガリウムを、窒素もしくはアルゴン雰囲気下、360 以上、420 未満の温度にて5分以上保持する第1工程、その後昇華する第2工程からなることを特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス材料の製造方法。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

常圧下、25℃にて、トルエンに対する溶解度が、0.05 g/L以下であることを特徴とするトリス(8-オキシキノリノラト)ガリウムからなる有機エレクトロルミネッセンス材料。

【請求項 2】

原料として、常圧下、25℃にて、トルエンに対する溶解度が、0.5 g/Lより大であるトリス(8-オキシキノリノラト)ガリウムを、窒素もしくはアルゴン雰囲気下、360℃以上、420℃未満の温度にて5分間以上保持する第1工程、その後昇華する第2工程からなることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス材料の製造方法

10

【請求項 3】

一対の電極間に挟持された有機発光層、あるいは有機発光層を含む多層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも一層が、請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス材料を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は平面光源や表示に使用される有機エレクトロルミネッセンス素子の構成材料となる新規なトリス(8-オキシキノリノラト)ガリウムからなる有機エレクトロルミネッセンス材料とその製造方法に関するものである。

20

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子と表記する)は、発光成分を含む有機化合物層とこの有機化合物層を挟持する一対の電極から構成され、具体的には陽極/有機発光層/陰極の構成を基本とし、これに正孔注入層や電子注入層を適宜設けたものが知られている。そのような有機化合物層の材料(以下、有機EL材料と表記する)の一つとして、コダック社のC. W. Tangと S. A. VanSlykeによりAppl. Phys. Lett., 51巻, 913頁(1987年)に発表されたトリス(8-オキシキノリノラト)アルミニウム(以下、Alq3と表記する)は代表的な有機EL材料として良く知られている。このAlq3は、フェイシャル(facial)型とメリジオナル(meridional)型の2種類の立体異性体が存在することは古くから知られており(例えば Anal. Chem., 40巻, 1945頁(1968年)、Talanta, 14巻, 1213頁(1967年)、Acta. Chem. Scand., 22巻, 1067頁(1968年)など)、その後Alq3が有機EL素子用材料として有用であることが分かってから、Alq3はこれら2種類の異性体に加えて、いくつかの結晶形をとりうるようになってきた(例えば、J. Chem. Phys., 114巻, 9625頁(2001年)、Chem. Commun., 2908頁(2002年)、Adv. Mater., 16巻, 861頁(2004年)など)。

30

【0003】

ところで、Alq3のガリウム類縁体に相当するトリス(8-オキシキノリノラト)ガリウム(以下、Gaqq3と表記する)を用いた有機EL素子に関しては、特許公報第2828821号、特開平7-62526号公報が開示されている。また、P. E. BurrowsらによりAppl. Phys. Lett., 64巻, 2718頁(1994年)に発表されたN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)1,1'-ビフェニル4,4'-ジアミン(TPD)を正孔輸送材料に用いた2層型素子において、Gaqq3を電子輸送性発光層として使用して作成した素子は、Alq3を使用した場合に比べて、抵抗が低く、約5V低い駆動開始電圧(Turn-on Voltage)を示すことが報告されている。同様な結果は、P. E. Burrows, J. Appl. Phys., 79巻, 7991頁(1996年)に報告されており、低電圧で素子が駆動するという優れた特性を持つことが明らかにされた。しかし、上述のAlq3と比較すると、その研究例は非常に少なく、Gaqq3の異性体、特に結晶形に関する研究例は、最近、BrinkmannらによりChem. Mater., 16巻, 4627頁(2004年)に発表された報

40

50

告が最初の例と思われる。これによると、Ga_q3は、Al_q3同様、フェイシャル型とメリジオナル型の2種類の異性体が存在し、さらに α 型、 β 型、 δ 型の3種類の結晶形が存在するという。したがって、これ以前の報告はいずれも、上述の異性体や結晶形を考慮せずに行われた研究であるといえる。

【0004】

しかし、これらの異性体や結晶形が、それを用いた有機EL素子の性能にどのように影響するかについての定量的な関係は報告されていない。その理由の一つとして、これら異性体や結晶形を、工業的規模で選択的に合成したり、分離したりすることは非常に難しく、加えて、これら異性体や結晶形の含有比率を分析的に定量する方法がいまだ確立されていないことが、これらの異性体や結晶形と有機EL素子の性能との関連性の研究を困難なものとしている。

10

【0005】

Al_q3は製造方法や製造ロットなどの違いによって、しばしば有機EL素子の特性に差異が認められることは業界で知られており、その要因として、上述した異性体や結晶形の含有率に加え、不純物や水分などの影響も推測されている。これは、学術的には興味ある研究対象であるが、上述した理由により未だ解明されていないのが現状である。したがって、Al_q3の類縁体であるGa_q3に関しても、同様なことが考えられるが、産業への利用といった実用的見知では、これらの異性体や結晶形と有機EL素子の性能との関連性の解明よりもむしろ、簡便な方法で良好な特性を与えるGa_q3とその判別方法およびそのようなGa_q3の工業的規模での製造方法が重要な課題といえる。

20

【0006】

【特許文献1】特許第2828821号公報

【特許文献2】特開平7-62526号公報

【非特許文献1】P. E. Burrows, J. Appl. Phys., 79巻, 7991頁(1996年)

【非特許文献2】Chem. Mater., 16巻, 4627頁(2004年)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

近年、良好なEL素子特性、特により低い駆動開始電圧で駆動可能な有機EL素子とそれを達成しうる有機EL材料が求められている。上述したとおり、Ga_q3は、その類縁体であるAl_q3より駆動開始電圧が低い材料であることは既に知られているが、Al_q3と同様、その製造方法や製造ロットなどの違いによって、有機EL素子の特性に差異が現れることが予測される。そこで、より低い駆動開始電圧を与えうるGa_q3を安定かつ安価に工業的規模で製造できる方法が求められていた。

30

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者らは、以上の諸問題を考慮し解決すべく鋭意研究を重ねた結果、本発明に至った。すなわち、本発明は、常圧下、25℃にて、トルエンに対する溶解度が、0.05 g/L以下であることを特徴とするトリス(8-オキシキノリノラト)ガリウムからなる有機エレクトロルミネッセンス材料に関する。

40

【0009】

また、本発明は、原料として、常圧下、25℃にて、トルエンに対する溶解度が、0.5 g/Lより大であるトリス(8-オキシキノリノラト)ガリウムを、窒素もしくはアルゴン雰囲気下、360℃以上、420℃未満の温度にて5分間以上保持する第1工程、その後昇華する第2工程からなることを特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス材料の製造方法に関する。

【0010】

さらに本発明は、一対の電極間に挟持された有機発光層、あるいは有機発光層を含む多層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層の少なくとも一層が、上記有機エレクトロルミネッセンス材料を含有することを特徴とする有機エ

50

クトロルミネッセンス素子に関する。

【発明の効果】

【0011】

本発明の有機EL材料を用いて作製した有機EL素子は、特に低い駆動開始電圧で発光することが可能であり、素子構成における電子注入層、電子輸送層、電子注入性発光層、発光層に好適に使用することができる。よって、テレビや携帯電話等のフラットパネルディスプレイや発光体として、さらには複写機やプリンター等の光源、液晶ディスプレイや計器類等の光源、表示板、標識灯、照明等への応用が可能である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

本発明者らは、有機EL素子の性能を左右するGa_q3の品位を把握するため各種の化学的および物理的分析を行った結果、Ga_q3の溶解度が、それを用いて作成した有機EL素子の特性に関連していることを見出した。すなわち、従来の技術で製造したGa_q3(以下、従来品)及び本発明者らが開発したGa_q3(以下、本発明品)の両者について、トルエンに対する溶解度と有機EL素子の特性との関連性を調べた結果、有機EL素子の特性の指標である駆動開始電圧において、本発明品を用いて作製した素子は、公知のGa_q3の場合に比べて、より低い駆動電圧で発光することを確認した。本発明は上記事実に基づいて完成されたものである。

【0013】

まず、本発明の有機EL材料について説明する。本発明の有機EL材料は、常圧下、25℃にて、トルエンに対する溶解度が、0.05g/L以下であるGa_q3からなる有機EL材料である。本発明の有機EL材料は、25℃にて、トルエンに対する溶解度が、0.05g/L以下であるが、0.01g/L以下であることがより好ましく、0.005g/L以下であることがさらに好ましい。この理由については定かでないが、上述したGa_q3の異性体や結晶形の含有率などの違いによるものではないかと推察される。

【0014】

本明細書において、Ga_q3のトルエンに対する溶解度の測定方法は、所定量のGa_q3を秤量し、トルエン中で激しく振とうして、直ちに目視で観察するという簡便な方法である。この際、トルエンとGa_q3を混合して長時間(例えば30分間以上)振とうすると、Ga_q3の結晶状態が変化してしまう可能性があるため避ける必要があり、振とうと溶解度の確認は、通常5分以内で行う必要がある。溶解度測定の一例としては、25℃の環境下、トルエン100mLにGa_q3を5mg加えて1分間激しく振とうする。ここで、完全にGa_q3が溶解したか否かで本発明の有機EL材料であるか否かを判断することができる。ここで使用するトルエンは、JIS試薬一級以上の純度のものであれば十分使用可能である。

【0015】

次に、本発明の有機EL材料の製造方法について説明する。原料として用いる粗製Ga_q3の合成は従来公知の方法を用いて差し支えない。例えば、8-オキシキノリンとガリウム源である硫酸ガリウム、アンモニウム明礬等の無機ガリウム化合物やガリウムアルコキシド、その他の有機ガリウム化合物とを適当な溶媒中で反応させることで、容易に調製することができる。このようにして調製した粗製Ga_q3を有機EL素子に使用する場合、前もって昇華を行うのが通常である。本発明の有機EL材料の製造に際しては、上述した粗製Ga_q3、昇華したGa_q3のいずれを使用しても構わない。また市販品を使用しても差し支えない。

【0016】

本発明の有機EL材料の製造方法は、原料として、常圧下、25℃にて、トルエンに対する溶解度が、0.5g/Lより大であるGa_q3を用いて、窒素もしくはアルゴン雰囲気下、360℃以上、420℃未満の温度にて5分間以上保持する第1工程と、その後昇華する第2工程からなる。まず第1工程で、常圧下、25℃にて、トルエンに対する溶解度が、0.05g/L以下であるGa_q3が形成する。この工程を、大気下で行うとGa_q3の酸化が起こり、本発明の有機EL材料は得られない。また真空下で行うと、360℃に満たない温度でGa_q3の昇華が起こるため、所望とする温度である360℃以上、420℃未満の温

10

20

30

40

50

度に保持することができず、やはり本発明の有機EL材料は得られない。すなわち第1工程では、窒素もしくはアルゴン雰囲気下でGa_q3を360以上、420未満の温度にて5分間以上保持する必要があるが、好ましくは10分以上、より好ましくは1時間以上、さらに好ましくは3時間以上保持する。また温度範囲は、360以上、420未満であるが、380以上、420未満が好ましく、390以上、410未満がさらに好ましい。使用する窒素もしくはアルゴンは、99重量%以上の純度であれば構わないが、99.9重量%以上であることが好ましく、99.99重量%以上であることがより好ましく、99.999重量%以上であることがさらに好ましい。また、これら使用する窒素もしくはアルゴンに含有する酸素濃度は1%以下であることが好ましく、0.1重量%以下であることがより好ましく、0.01%以下であることがさらに好ましく、0.001重量%以下であることが特に好ましい。

10

【0017】

次いで第2工程で、Ga_q3を昇華して本発明の有機EL材料を得ることができる。ここで、第1工程と第2工程は、同一の装置を用いても構わないし、個別の装置を使用しても構わない。また断続的に昇華を行っても、連続的に昇華を行っても構わない。しかし、製造工程の効率化とコンタミ防止のために、同一の昇華装置を用いて連続的に昇華を行うのが望ましい。

【0018】

この第2工程で用いる昇華装置は、公知の昇華精製装置を用いることが可能で、一般に昇華部（原料仕込み部）と析出部（昇華物回収部）からなり、真空ポンプと接続されている。昇華部は温度制御できる必要があるが、析出部は温度制御を行っても行わなくても良いものの、温度制御できるものが好ましい。これら昇華部と析出部は、±10以内、好ましくは±5、より好ましくは±2以内に温度制御できることが望ましい。昇華精製装置の材質は、ガラス製であっても、金属製であってもよい。この場合、外側は鉄等の金属とし、内面はステンレス、アルミニウム等の金属の他、硬質ガラス、石英ガラスやアルミナ等のセラミックス製としてもよい。昇華部温度は420以上まで自由に設定できることが好ましく、加熱方法は抵抗加熱、誘導加熱等の電気加熱、熱媒体を使用する間接加熱など公知の方法が採用できる。昇華部や析出部は、外側にジャケットを設け、そこに一定温度の熱媒体を流す間接加熱方式や抵抗加熱や誘導加熱等の電熱加熱を採っても良い。

20

【0019】

第2工程では、第1工程で得たGa_q3を、10Torr以下の減圧下、好ましくは3Torr以下の減圧下、かつ昇華部の温度を300以上、420未満、析出部の主帯域の温度を100以上、250未満に保持して昇華精製することが望ましい。昇華部温度については、420以上に上げるとGa_q3の分解を促進するため好ましくない。また300未満では、原料Ga_q3が十分な速度で昇華しないため生産性が低下して好ましくない。析出部の温度については、250以上ではGa_q3の析出効率が低下するし、100未満ではGa_q3以外の不純物の析出が同時に起こる可能性が生じやすい。

30

【0020】

また、厳密には昇華部温度と析出部温度は、蒸気圧に関係するため、圧力によって変動する。すなわち、圧力を低くすれば、原料昇華部温度と製品析出部温度共に下げることができるので、原料、製品共に熱による変性を抑制することができて有利である。なお、本発明という析出物とは、精製されたGa_q3を析出させる帯域であり、ここで析出したGa_q3を回収するためのものである。

40

【0021】

本発明の有機EL材料は、遮光下、外気から遮断された密封容器内で、50以下（より好ましくは30以下）、湿度80%以下（より好ましくは60%以下）の環境下で保存されるのが望ましい。

【0022】

ところで、有機EL素子は、陽極と陰極間に一層または多層の有機層を形成した素子から構成されるが、ここで、一層型有機EL素子とは、陽極と陰極との間に発光層のみから

50

なる素子を指す。一方、多層型有機EL素子とは、発光層の他に、発光層への正孔や電子の注入を容易にしたり、発光層内での正孔と電子との再結合を円滑に行わせたりすることを目的として、正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層などを積層させたものを指す。したがって、多層型有機EL素子の代表的な素子構成としては、(1)陽極/正孔注入層/発光層/陰極、(2)陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/陰極、(3)陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極、(4)陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子注入層/陰極、(5)陽極/正孔注入層/発光層/正孔阻止層/電子注入層/陰極、(6)陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子注入層/陰極、(7)陽極/発光層/正孔阻止層/電子注入層/陰極、(8)陽極/発光層/電子注入層/陰極等の多層構成で積層した素子構成が考えられる。

10

【0023】

また、上述した各有機層は、それぞれ二層以上の層構成により形成されても良く、いくつかの層が繰り返し積層されていても良い。そのような例として、近年、光取り出し効率の向上を目的に、上述の多層型有機EL素子の一部の層を多層化する「マルチ・フォトン・エミッション」と呼ばれる素子構成が提案されている。これは例えば、ガラス基板/陽極/正孔輸送層/電子輸送性発光層/電子注入層/電荷発生層/発光ユニット/陰極から構成される有機EL素子に於いて、電荷発生層と発光ユニットの部分を複数層積層するといった方法があげられる。

【0024】

本発明の有機EL素子の各層の形成方法としては、真空蒸着、電子線ビーム照射、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング等の乾式成膜法、もしくはスピンコーティング、ディッピング、フローコーティング等の湿式成膜法のいずれかの方法を適用することができる。有機層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。また特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することによっても、有機層を形成することができる。各層の膜厚は特に限定されるものではないが、膜厚が厚すぎると一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要となり効率が悪くなり、逆に膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生し、電界を印加しても十分な発光輝度が得にくくなる。したがって、各層の膜厚は、1nmから1μmの範囲が適しているが、10nmから0.2μmの範囲がより好ましい。

20

30

【0025】

本発明の有機EL素子を作製する方法については、上記の材料および方法によって、陽極から、順次必要な有機層、陰極の順に形成しても良いし、陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製しても良い。

【0026】

本発明の有機EL材料は、上述の有機層の内、特に電子注入層、電子輸送層、電子輸送性発光層、発光層に好適に使用することができる。また、本発明の有機EL材料は、単一の化合物での使用はもちろんのこと、他の材料と組み合わせ、すなわち混合、共蒸着、積層するなどして使用することが可能である。

40

【0027】

以下、上述した各有機層で用いられる材料について説明する。まず、正孔注入層には、発光層に対して優れた正孔注入効果を示し、かつ陽極界面との密着性と薄膜形成性に優れた正孔注入層を形成できる正孔注入材料が用いられる。また、このような材料を多層積層させ、正孔注入効果の高い材料と正孔輸送効果の高い材料とを多層積層させた場合、それぞれに用いる材料を正孔注入材料、正孔輸送材料と呼ぶことがある。これら正孔注入材料や正孔輸送材料は、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常5.5eV以下と小さい必要がある。このような正孔注入層としては、より低い電界強度で正孔を発光層に輸

50

送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6 \text{ V/cm}$ の電界印加時に、少なくとも $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{V} \cdot \text{秒}$ であるものが好ましい。正孔注入材料および正孔輸送材料としては、上記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において正孔の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機 EL 素子の正孔注入層に使用されている公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0028】

このような正孔注入材料や正孔輸送材料としては、具体的には、例えばトリアゾール誘導体（米国特許 3, 112, 197 号明細書等参照）、オキサジアゾール誘導体（米国特許 3, 189, 447 号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭 37-16096 号公報等参照）、ポリアリールアルカン誘導体（米国特許 3, 615, 402 号明細書、同第 3, 820, 989 号明細書、同第 3, 542, 544 号明細書、特公昭 45-555 号公報、同 51-10983 号公報、特開昭 51-93224 号公報、同 55-17105 号公報、同 56-4148 号公報、同 55-108667 号公報、同 55-156953 号公報、同 56-36656 号公報等参照）、ピラゾリン誘導体およびピラズロン誘導体（米国特許第 3, 180, 729 号明細書、同第 4, 278, 746 号明細書、特開昭 55-88064 号公報、同 55-88065 号公報、同 49-105537 号公報、同 55-51086 号公報、同 56-80051 号公報、同 56-88141 号公報、同 57-45545 号公報、同 54-112637 号公報、同 55-74546 号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第 3, 615, 404 号明細書、特公昭 51-10105 号公報、同 46-3712 号公報、同 47-25336 号公報、特開昭 54-53435 号公報、同 54-110536 号公報、同 54-119925 号公報等参照）、アリールアミン誘導体（米国特許第 3, 567, 450 号明細書、同第 3, 180, 703 号明細書、同第 3, 240, 597 号明細書、同第 3, 658, 520 号明細書、同第 4, 232, 103 号明細書、同第 4, 175, 961 号明細書、同第 4, 012, 376 号明細書、特公昭 49-35702 号公報、同 39-27577 号公報、特開昭 55-144250 号公報、同 56-119132 号公報、同 56-22437 号公報、西独特許第 1, 110, 518 号明細書等参照）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第 3, 526, 501 号明細書等参照）、オキサゾール誘導体（米国特許第 3, 257, 203 号明細書等）に開示のもの）、スチリルアントラセン誘導体（特開昭 56-46234 号公報等参照）、フルオレノン誘導体（特開昭 54-110837 号公報等参照）、ヒドラゾン誘導体（米国特許第 3, 717, 462 号明細書、特開昭 54-59143 号公報、同 55-52063 号公報、同 55-52064 号公報、同 55-46760 号公報、同 55-85495 号公報、同 57-11350 号公報、同 57-148749 号公報、特開平 2-311591 号公報等参照）、スチルベン誘導体（特開昭 61-210363 号公報、同第 61-228451 号公報、同 61-14642 号公報、同 61-72255 号公報、同 62-47646 号公報、同 62-36674 号公報、同 62-10652 号公報、同 62-30255 号公報、同 60-93455 号公報、同 60-94462 号公報、同 60-174749 号公報、同 60-175052 号公報等参照）、シラザン誘導体（米国特許第 4, 950, 950 号明細書）、ポリシラン系（特開平 2-20499 6 号公報）、アニリン系共重合体（特開平 2-282263 号公報）、特開平 1-211399 号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー（特にチオフェンオリゴマー）等を挙げることができる。

【0029】

正孔注入材料や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（特開昭 63-2956965 号公報）、芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物（米国特許第 4, 127, 412 号明細書、特開昭 53-27033 号公報、同 54-58445 号公報、同 54-149634 号公報、同 54-64299 号公報、同 55-79450 号公報、同 55-144250 号公報、同 56-119132 号公報、同 61-295558 号公報、同 61-98353 号公報、同 63-2956 50

95号公報等参照)を用いることもできる。例えば、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニル等や、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4"-トリス(N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン等を挙げることができる。また、正孔注入材料として銅フタロシアニンや水素フタロシアニン等のフタロシアニン誘導体もあげられる。さらに、その他、芳香族ジメチリデン系化合物、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入材料や正孔輸送材料の材料として使用することができる。

【0030】

芳香族三級アミン誘導体の具体例としては、例えば、N,N'-ジフェニル-N,N'-(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン、N,N,N',N'-(4-メチルフェニル)-1,1'-フェニル-4,4'-ジアミン、N,N,N',N'-(4-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジナフチル-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン、N,N'-(メチルフェニル)-N,N'-(4-n-ブチルフェニル)-フェナントレン-9,10-ジアミン、N,N'-ビス(4-ジ-4-トリルアミノフェニル)-4-フェニル-シクロヘキサン、N,N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-ビフェニル)-N,N'-ジフェニルベンジジン、N,N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-フェニル)-N,N'-ジフェニルベンジジン、N,N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-フェニル)-N,N'-ジ(1-ナフチル)ベンジジン、N,N'-ビス(4'-フェニル(1-ナフチル)アミノ-4-フェニル)-N,N'-ジフェニルベンジジン、N,N'-ビス(4'-フェニル(1-ナフチル)アミノ-4-フェニル)-N,N'-ジ(1-ナフチル)ベンジジン等があげられ、これらは正孔注入材料、正孔輸送材料いずれにも使用することができる。

【0031】

次に、電子注入層には、発光層に対して優れた電子注入効果を示し、かつ陰極界面との密着性と薄膜形成性に優れた電子注入層を形成できる電子注入材料が用いられる。そのような電子注入材料の例としては、金属錯体化合物、含窒素五員環誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、ジフェノキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ペリレンテトラカルボン酸誘導体、フレオレニリデンメタン誘導体、アントロン誘導体、シロール誘導体、トリアリールホスフィンオキシド誘導体、カルシウムアセチルアセトナート、酢酸ナトリウムなどがあげられる。また、セシウム(Cs)等の金属をバソフェナントロリンにドーブした無機/有機複合材料(高分子学会予稿集,第50巻,4号,660頁,2001年発行)や、第50回応用物理学関連連合講演会講演予稿集、No.3、1402頁、2003年発行記載のBCP、TPP、T5MPyTZ等も電子注入材料の例としてあげられるが、素子作成に必要な薄膜を形成し、陰極からの電子を注入できて、電子を輸送できる材料が求められる。

【0032】

本発明の有機EL材料は、電子注入材料として好適に使用することができる。また、本発明の有機EL材料は、単独で電子注入材料としても用いることができるが、さらなる特性向上のため、他の電子注入材料と併用しても構わない。

【0033】

本発明の有機EL材料と併用可能な他の電子注入材料としては、金属錯体化合物、含窒素五員環誘導体、シロール誘導体、トリアリールホスフィンオキシド誘導体などがあげられる。本発明に使用可能な好ましい金属錯体化合物としては、特定の8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナ

10

20

30

40

50

ート) (フェノラート) アルミニウム等のアルミニウム錯体化合物、トリス(4-メチル-8-ヒドロキシキノリナート) ガリウム、トリス(5-メチル-8-ヒドロキシキノリナート) ガリウム、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート) (フェノラート) ガリウム、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート) (4-シアノ-1-ナフトラート) ガリウム等のガリウム錯体化合物の他、ビス(8-ヒドロキシキノリナート) マンガン、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート) ベリリウム、ビス(8-ヒドロキシキノリナート) 亜鉛、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート) 亜鉛等の金属錯体化合物があげられる。

【0034】

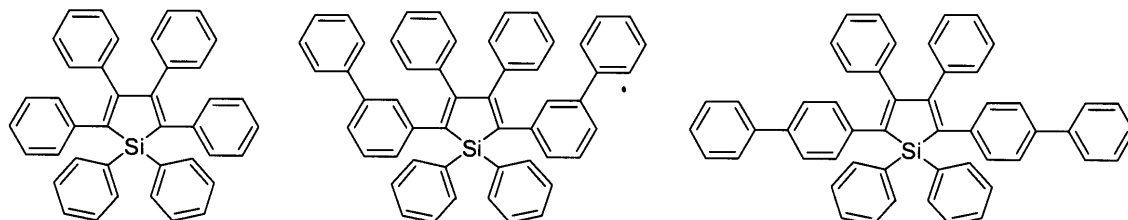
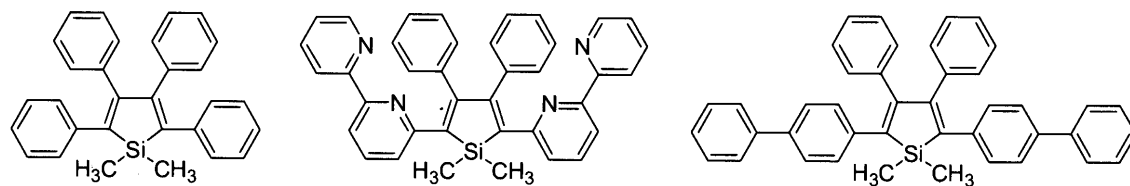
また、本発明の有機EL材料と併用可能な含窒素五員環誘導体としては、オキサゾール誘導体、チアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体があげられ、具体的には、2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-オキサゾール、2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-チアゾール、2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)-4-tert-ブチルベンゼン]、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1,3,4-チアジアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-チアジアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルチアジアゾリル)]ベンゼン、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1,3,4-トリアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-トリアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルトリアゾリル)]ベンゼン等があげられる。

【0035】

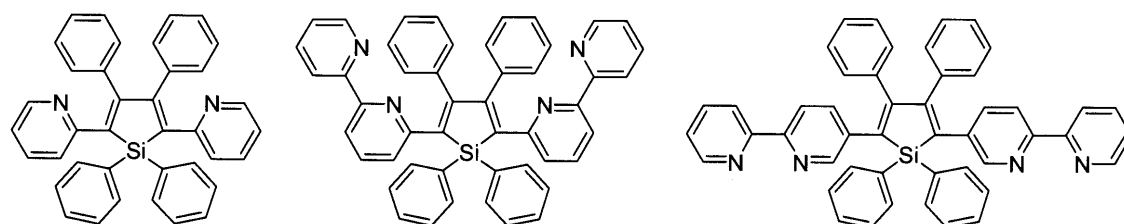
また、本発明の有機EL材料と併用可能なシロール誘導体としては、例えば、下記に示すシロール誘導体があげられる。

【0036】

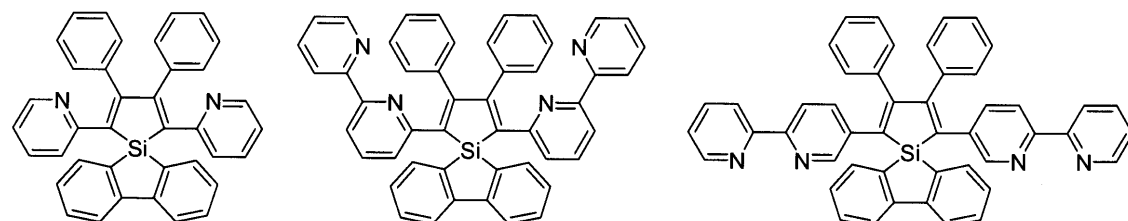
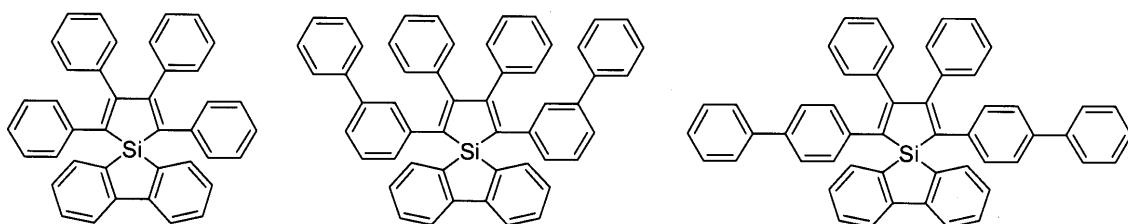
【化 1】



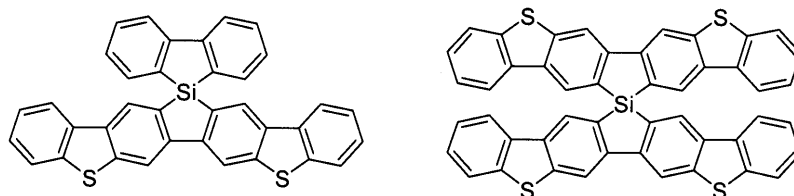
10



20



30



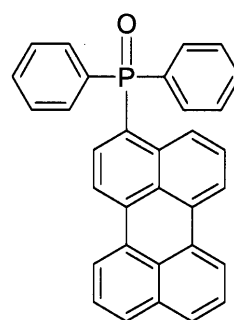
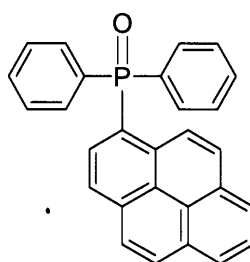
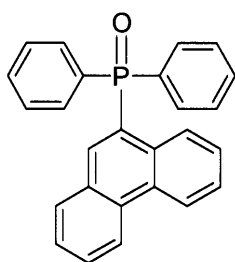
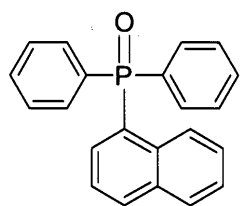
40

【 0 0 3 7 】

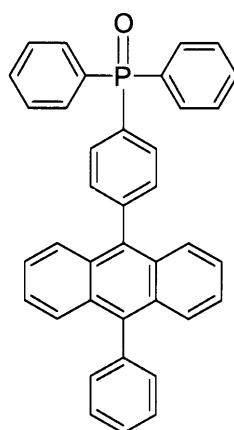
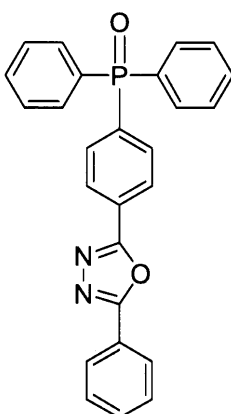
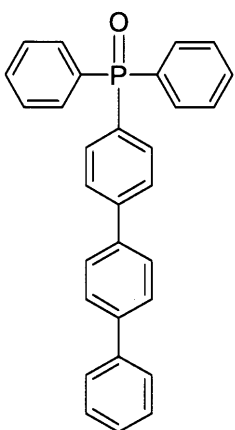
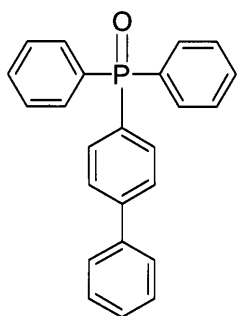
また、本発明の有機EL材料と併用可能なトリアリールホスフィンオキシド誘導体としては、特開2002-63989号公報、特開2004-95221号公報、特開2004-203828号公報、特開2004-204140号公報記載の、例えば下記に示すトリアリールホスフィンオキシド誘導体があげられる。

【 0 0 3 8 】

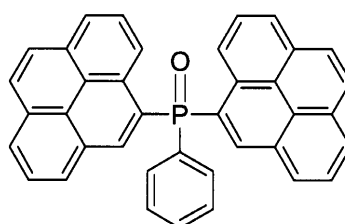
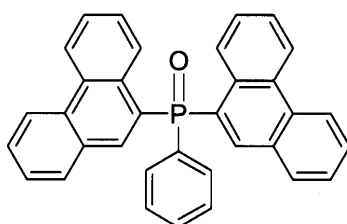
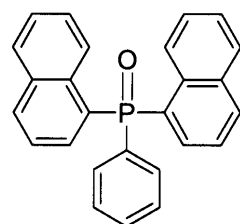
【化 2】



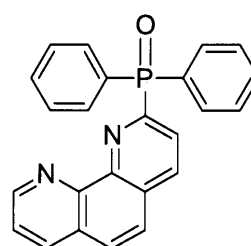
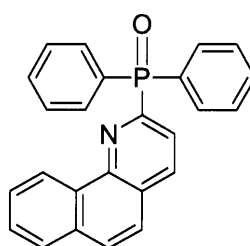
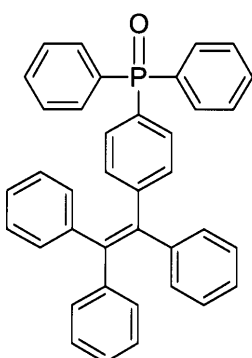
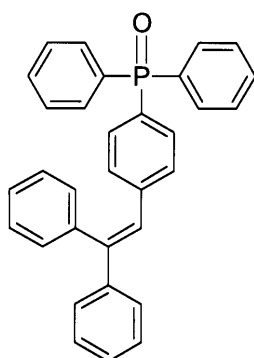
10



20



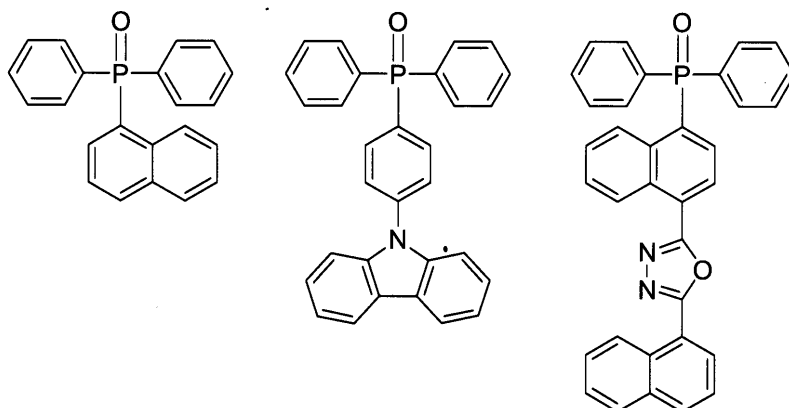
30



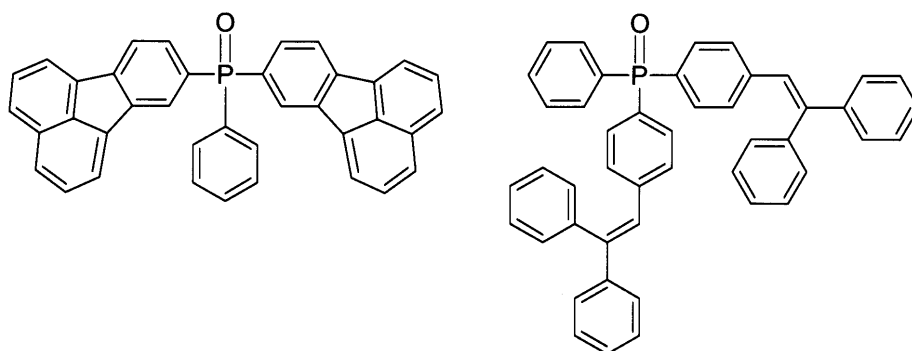
40

【 0 0 3 9 】

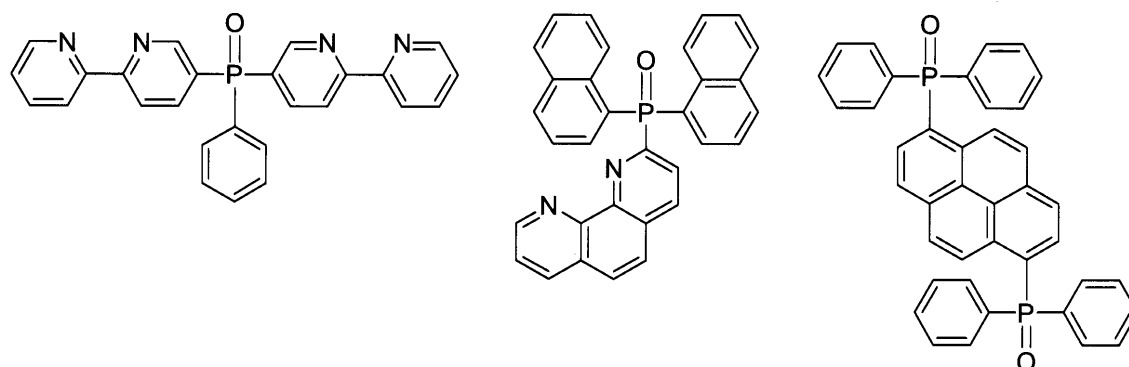
【化 3】



10



20



30

【 0 0 4 0 】

さらに、正孔阻止層には、発光層を経由した正孔が電子注入層に達するのを防ぎ、薄膜形成性に優れた層を形成できる正孔阻止材料が用いられる。そのような正孔阻止材料の例としては、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム等のアルミニウム錯体化合物や、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(4-フェニルフェノラート)ガリウム等のガリウム錯体化合物、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン(BCP)等の含窒素縮合芳香族化合物があげられる。

40

【 0 0 4 1 】

本発明の有機EL素子の発光層としては、以下の機能を併せ持つものが好適である。
 注入機能；電界印加時に陽極または正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極または電子注入層より電子を注入することができる機能
 輸送機能；注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能
 発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能
 ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさには、違いがあってもよく、また

50

正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

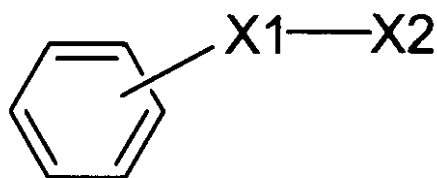
有機ＥＬ素子の発光材料は主に有機化合物であり、具体的には所望の色調により、次のような化合物が用いられる。

【００４２】

たとえば、紫外域から紫色の発光を得る場合には、下記一般式〔１〕で表される化合物が好適に用いられる。

一般式〔１〕

【化４】



10

〔式中、X 1 は下記一般式〔２〕で表される基を示し、X 2 は、フェニル基、１ - ナフチル基、２ - ナフチル基のいずれかを示す。〕

【００４３】

一般式〔２〕

【化５】



20

（式中、m は 2 ～ 5 の整数を示す）

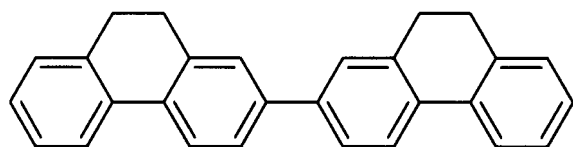
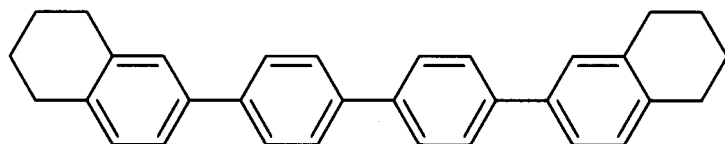
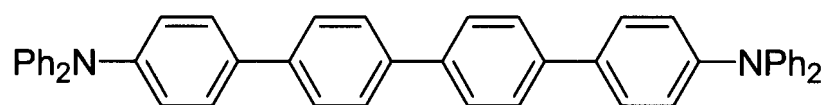
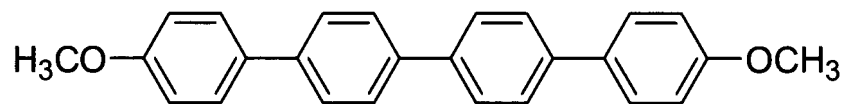
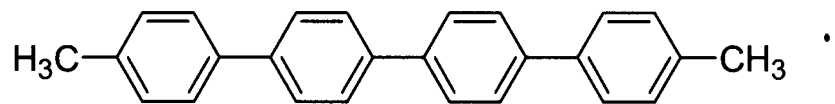
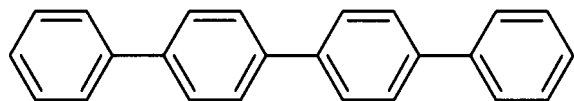
【００４４】

この一般式〔１〕の X 1、X 2 で表されるフェニル基、１ - ナフチル基、２ - ナフチル基、フェニレン基は、単数または複数の炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基、水酸基、スルホニル基、カルボニル基、アミノ基、ジメチルアミノ基またはジフェニルアミノ基等の置換基で置換されていてもよい。また、これら置換基が複数ある場合には、それらが互いに結合し、環を形成していてもよい。さらに、X 1 で表されるフェニレン基は、パラ位で結合したものが、結合性が良く、かつ平滑な蒸着膜が形成し易いことから好ましい。上記一般式〔１〕で表される化合物の具体例を示せば、下記のとおりである（ただし、Ph はフェニル基を表す）。

30

【００４５】

【化 6】



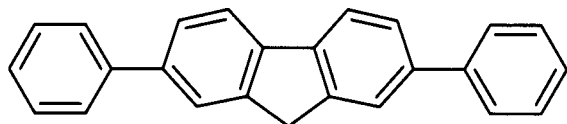
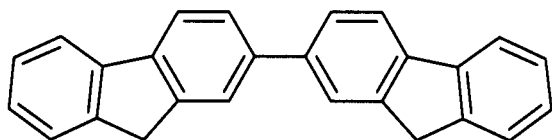
10

20

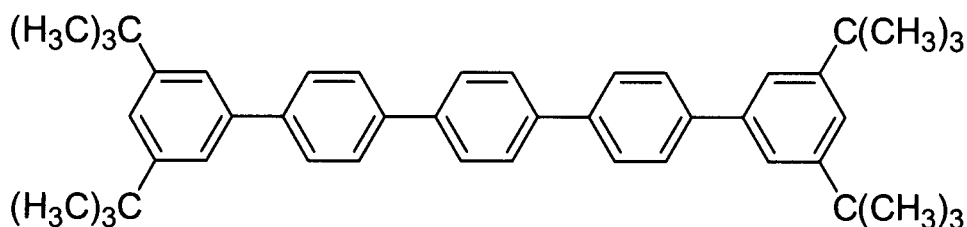
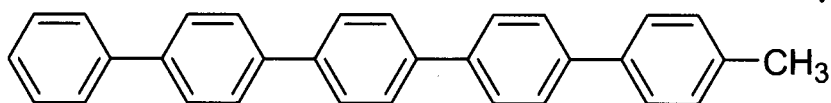
30

【 0 0 4 6 】

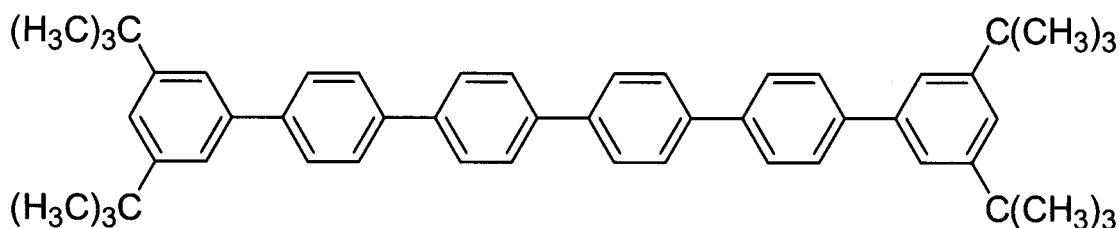
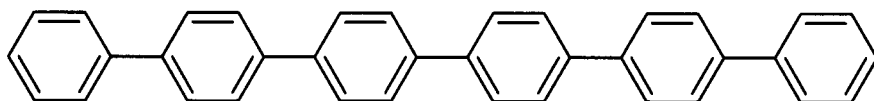
【化 7】



10



20



30

【 0 0 4 7 】

これら化合物の中では、特に p - クォーターフェニル誘導体、p - クイंकフェニル誘導体が好ましい。

40

また、可視域、特に青色から緑色の発光を得るためには、例えばベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、スチリルベンゼン系化合物を用いることができる。これら化合物の具体例としては、例えば特開昭 59 - 194393 号公報に開示されている化合物を挙げることができる。さらに他の有用な化合物は、ケミストリー・オブ・シンセティック・ダイズ (1971) 628 ~ 637 頁および 640 頁に列挙されている。

前記金属キレート化オキシノイド化合物としては、例えば、特開昭 63 - 295695 号公報に開示されている化合物を用いることができる。その代表例としては、トリス (8 - キノリノール) アルミニウム等の 8 - ヒドロキシキノリン系金属錯体や、ジリチウムエピントリジオン等が好適な化合物として挙げることができる。

50

また、前記スチリルベンゼン系化合物としては、例えば、欧州特許第 0 3 1 9 8 8 1 号明細書や欧州特許第 0 3 7 3 5 8 2 号明細書に開示されているものを用いることができる。そして、特開平 2 - 2 5 2 7 9 3 号公報に開示されているジスチリルピラジン誘導体も、発光層の材料として用いることができる。このほか、欧州特許第 0 3 8 7 7 1 5 号明細書に開示されているポリフェニル系化合物も発光層の材料として用いることができる。

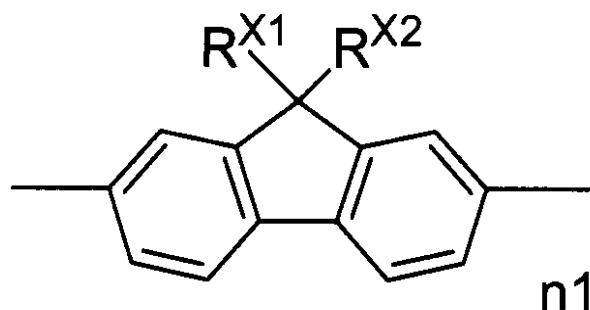
【 0 0 4 8 】

さらに、上述した蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物およびスチリルベンゼン系化合物等以外に、例えば 1 2 - フタロペリノン (J . A p p l . P h y s . , 第 2 7 巻 , L 7 1 3 (1 9 8 8 年)) 、 1 , 4 - ジフェニル - 1 , 3 - ブタジエン、 1 , 1 , 4 , 4 - テトラフェニル - 1 , 3 - ブタジエン (以上 A p p l . P h y s . L e t t . , 第 5 6 巻 , L 7 9 9 (1 9 9 0 年)) 、 ナフタルイミド誘導体 (特開平 2 - 3 0 5 8 8 6 号公報) 、 ペリレン誘導体 (特開平 2 - 1 8 9 8 9 0 号公報) 、 オキサジアゾール誘導体 (特開平 2 - 2 1 6 7 9 1 号公報、または第 3 8 回応用物理学関係連合講演会で浜田らによって開示されたオキサジアゾール誘導体) 、 アルダジン誘導体 (特開平 2 - 2 2 0 3 9 3 号公報) 、 ピラジリン誘導体 (特開平 2 - 2 2 0 3 9 4 号公報) 、 シクロペンタジエン誘導体 (特開平 2 - 2 8 9 6 7 5 号公報) 、 ピロロピロール誘導体 (特開平 2 - 2 9 6 8 9 1 号公報) 、 スチリルアミン誘導体 (A p p l . P h y s . L e t t . , 第 5 6 巻 , L 7 9 9 (1 9 9 0 年)) 、 クマリン系化合物 (特開平 2 - 1 9 1 6 9 4 号公報) 、 国際特許公報 W O 9 0 / 1 3 1 4 8 や A p p l . P h y s . L e t t . , v o l 5 8 , 1 8 , P 1 9 8 2 (1 9 9 1) に記載されているような高分子化合物、 9,9',10,10' - テトラフェニル - 2,2' - ビアントラセン、 P P V (ポリパラフェニレンビニレン) 誘導体、ポリフルオレン誘導体やそれら共重合体等、例えば、下記一般式 [3] ~ 一般式 [5] の構造をもつものや、

【 0 0 4 9 】

一般式 [3]

【 化 8 】



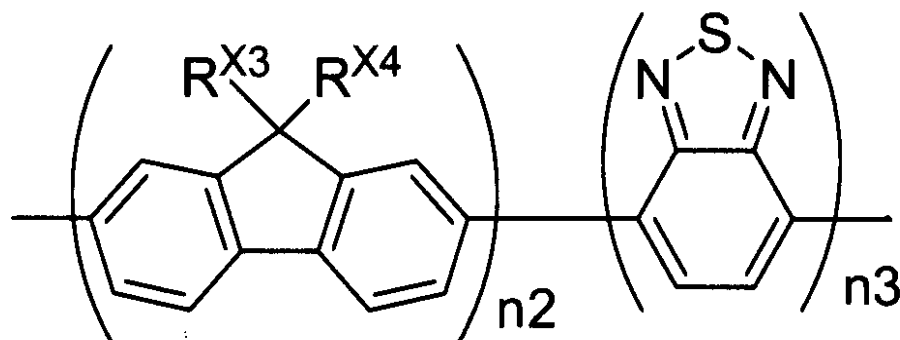
30

[式中、RX 1 および RX 2 は、それぞれ独立に、1 価の脂肪族炭化水素基を、n 1 は、3 ~ 1 0 0 の整数を表す。]

【 0 0 5 0 】

一般式 [4]

【 化 9 】



40

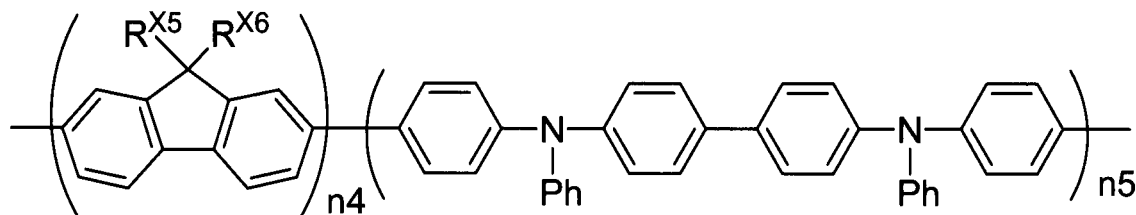
50

[式中、RX 3 および RX 4 は、それぞれ独立に、1 価の脂肪族炭化水素基を、n 2 および n 3 は、それぞれ独立に、3 ~ 1 0 0 の整数を表す。]

【 0 0 5 1 】

一般式 [5]

【 化 1 0 】



10

[式中、RX 5 および RX 6 は、それぞれ独立に、1 価の脂肪族炭化水素基を、n 4 および n 5 は、それぞれ独立に、3 ~ 1 0 0 の整数を表す。Ph はフェニル基を表す。]

【 0 0 5 2 】

9,10 - ビス (N - (4 - (2 - フェニルビニル - 1 - イル) フェニル) - N - フェニルアミノ) アントラセン等も発光層の材料として用いることができる。さらには、特開平 8 - 1 2 6 0 0 号公報に開示されているような下記一般式 [6] で示されるフェニルアントラセン誘導体も発光材料として用いることができる。

【 0 0 5 3 】

一般式 [6]

A 1 - L - A 2

[式中、A 1 及び A 2 は、それぞれ独立に、モノフェニルアントリル基またはジフェニルアントリル基を示し、これらは同一でも異なってもよい。L は、単結合または 2 価の連結基を表す。]

ここで、L で示される 2 価の連結基としては、置換基を有しても良い 2 価の単環もしくは縮合環芳香族炭化水素基が好ましい。特に、以下の一般式 [7] ないし一般式 [8] で表されるフェニルアントラセン誘導体は好適である。

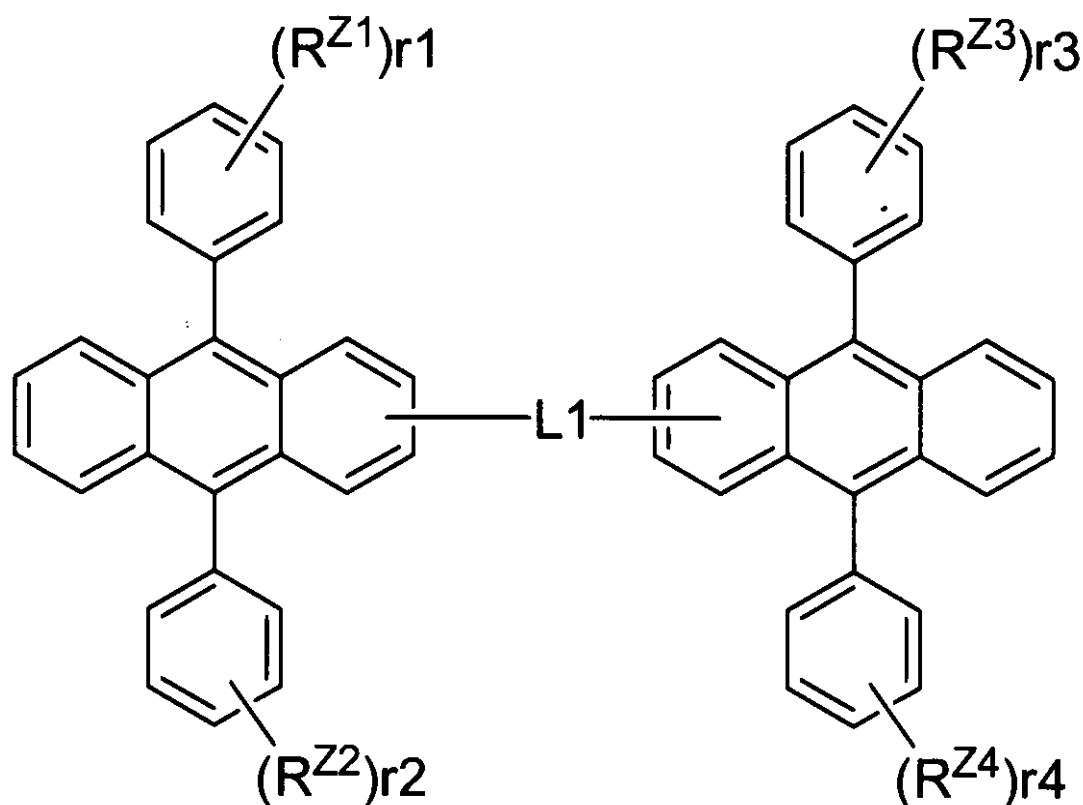
【 0 0 5 4 】

一般式 [7]

20

30

【化 1 1】



【 0 0 5 5 】

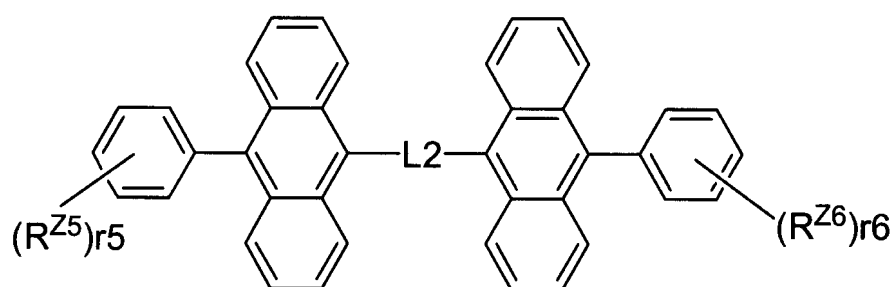
[式中、 $R^{Z1} \sim R^{Z4}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、1 価の芳香族炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ジアリールアミノ基、1 価の脂肪族複素環基、1 価の芳香族複素環基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 $r1 \sim r4$ は、それぞれ独立に、0 又は 1 ~ 5 の整数を表す。 $r1 \sim r4$ が、それぞれ独立に、2 以上の整数であるとき、 R^{Z1} 同士、 R^{Z2} 同士、 R^{Z3} 同士、 R^{Z4} 同士は各々同一でも異なるものであってもよく、 R^{Z1} 同士、 R^{Z2} 同士、 R^{Z3} 同士、 R^{Z4} 同士は結合して環を形成してもよい。 $L1$ は単結合又は置換基を有しても良い 2 価の単環もしくは縮合環芳香族炭化水素基を表し、置換基を有しても良い 2 価の単環もしくは縮合環芳香族炭化水素基は、アルキレン基、 $-O-$ 、 $-S-$ 又は $-NR-$ (ここで R はアルキル基又はアリール基を表す) が介在するものであってもよい。]

30

【 0 0 5 6 】

一般式 [8]

【化 1 2】



【 0 0 5 7 】

[式中、 R^{Z5} 及び R^{Z6} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、1 価の芳香族炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ジアリール

50

ルアミノ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 r_5 及び r_6 は、それぞれ独立に、0又は1～5の整数を表す。 r_5 及び r_6 が、それぞれ独立に、2以上の整数であるとき、 R^{Z5} 同士及び R^{Z6} 同士は各々同一でも異なるものであってもよく、 R^{Z5} 同士及び R^{Z6} 同士は結合して環を形成してもよい。 L_2 は単結合又は置換基を有しても良い2価の単環もしくは縮合環芳香族炭化水素基を表し、置換基を有しても良い2価の単環もしくは縮合環芳香族炭化水素基は、アルキレン基、 $-O-$ 、 $-S-$ 又は $-NR-$ （ここでRはアルキル基又はアリール基を表す）が介在するものであってもよい。]

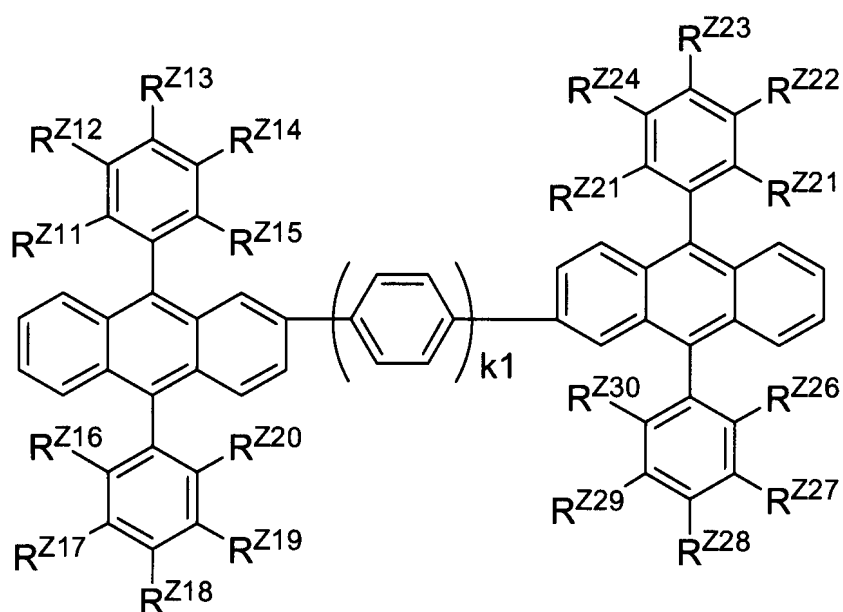
【0058】

前記一般式[7]の内、下記一般式[9]ないし一般式[10]で表されるフェニルアントラセン誘導体がさらに好適である。

【0059】

一般式[9]

【化13】

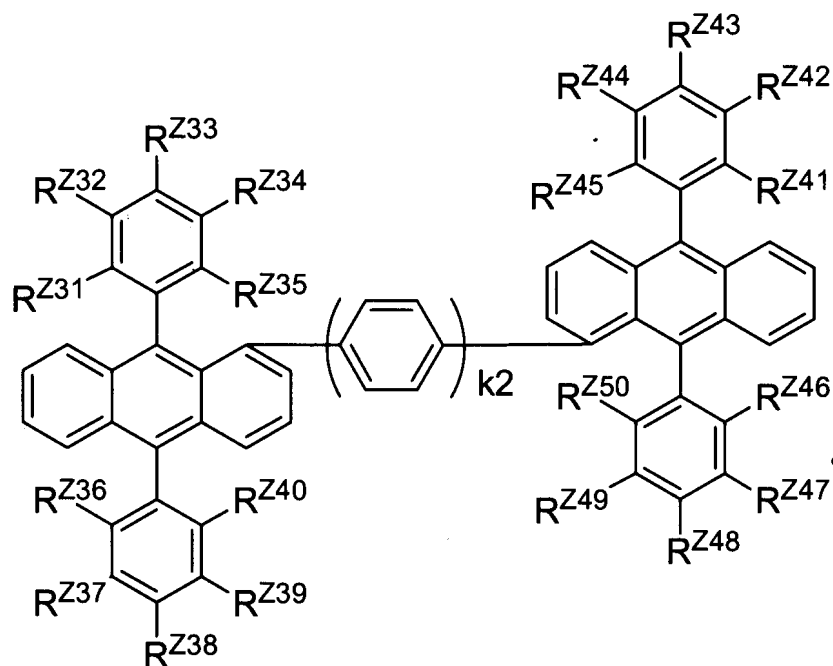


[式中、 $R^{Z11} \sim R^{Z30}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、1価の芳香族炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ジアリールアミノ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。また、 $R^{Z11} \sim R^{Z30}$ は、隣り合う基同士が連結し、環を形成していてもよい。 k_1 は、0～3の整数を表す。]

【0060】

一般式[10]

【化 1 4】



10

20

[式中、 $R^{Z31} \sim R^{Z50}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、1価の芳香族炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ジアリールアミノ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。また、 $R^{Z31} \sim R^{Z50}$ は、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。 k_2 は、0～3の整数を表す。]

【0061】

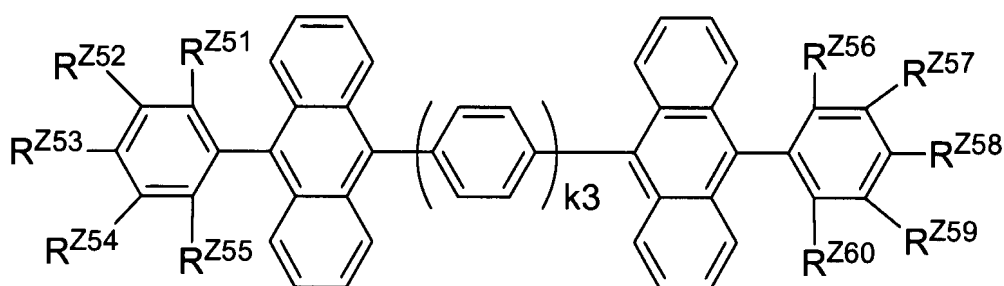
また、前記一般式[8]の内、下記一般式[11]で表されるフェニルアントラセン誘導体はさらに好適である。

【0062】

一般式[11]

30

【化 1 5】



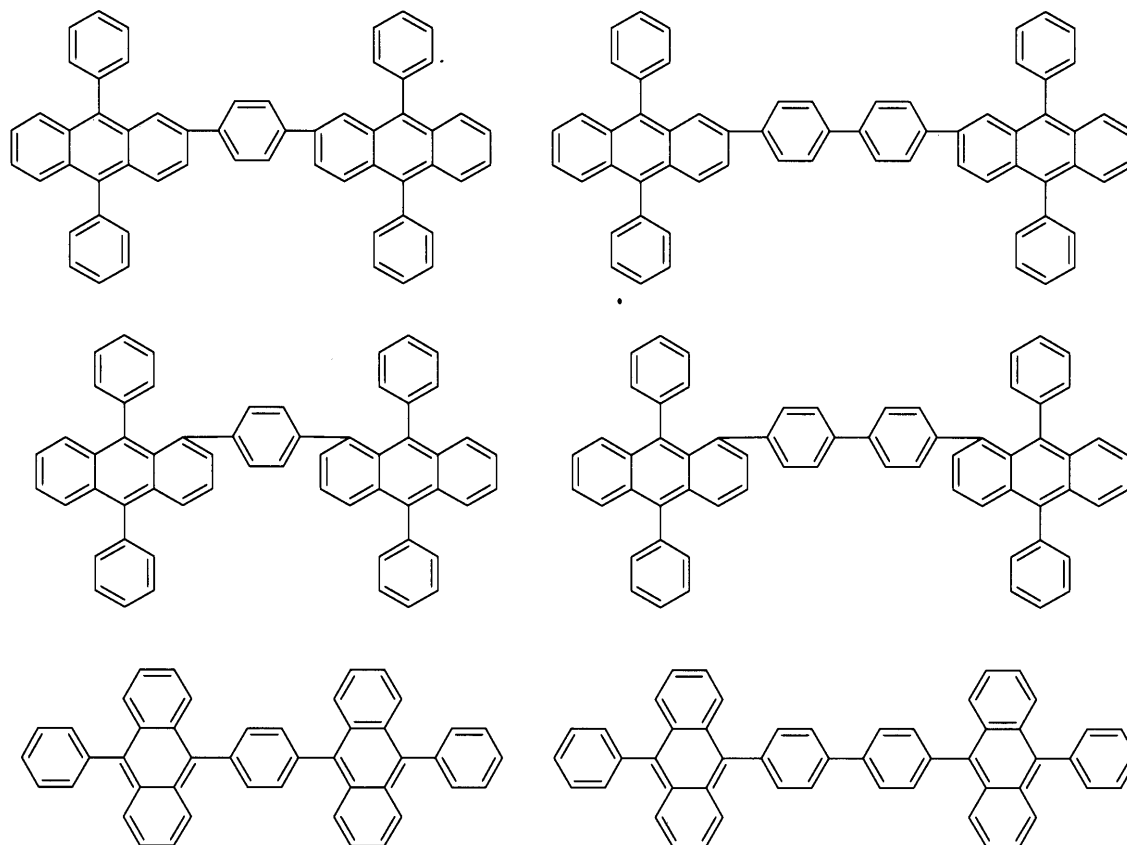
40

[式中、 $R^{Z51} \sim R^{Z60}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、1価の芳香族炭化水素基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ジアリールアミノ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。また、 $R^{Z51} \sim R^{Z60}$ は、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。 k_3 は、0～3の整数を表す。]

【0063】

上記一般式[9]～一般式[11]の具体例としては、下記化合物があげられる。

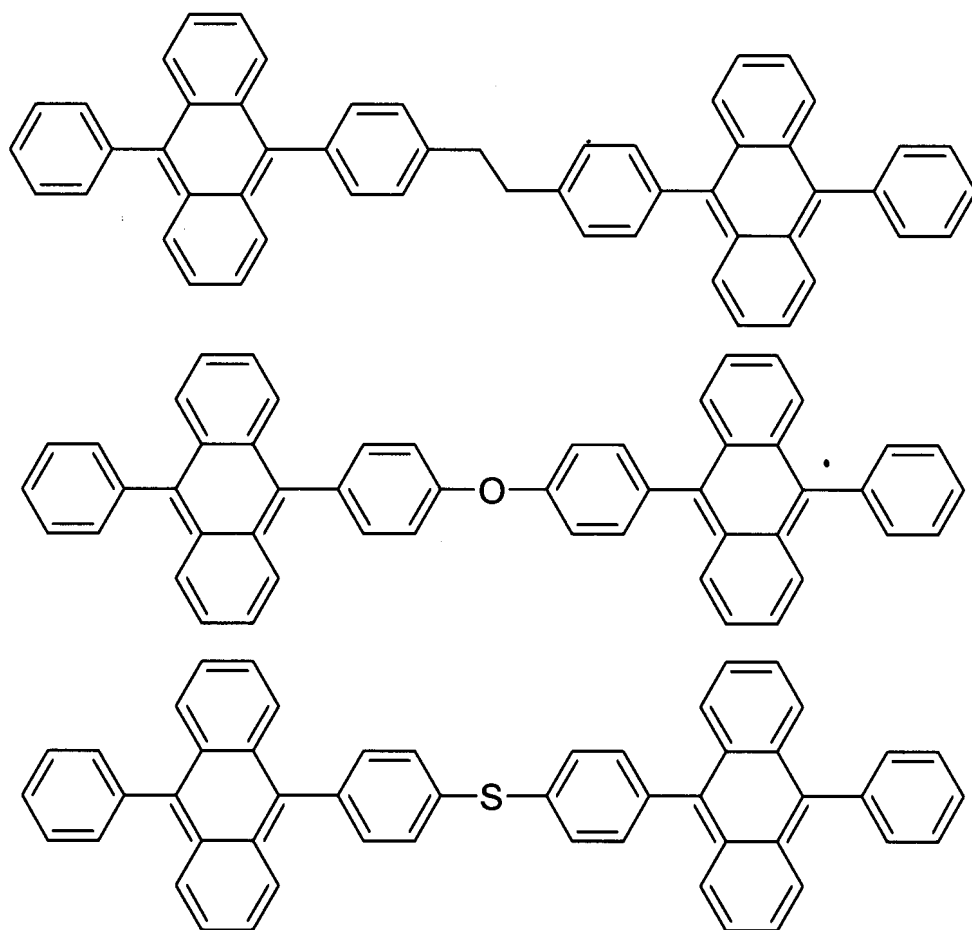
【化 1 6】



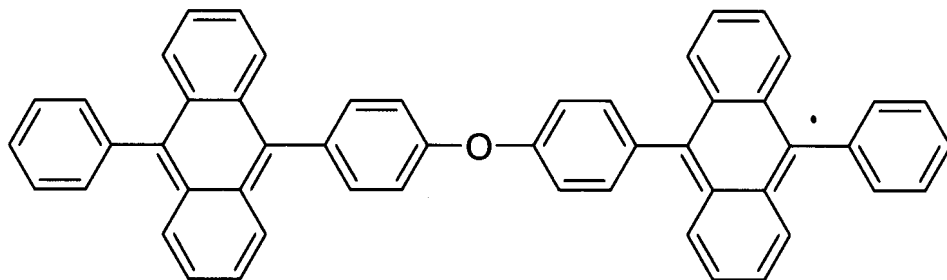
【 0 0 6 4】

さらには、以下の化合物も具体例として挙げられる。

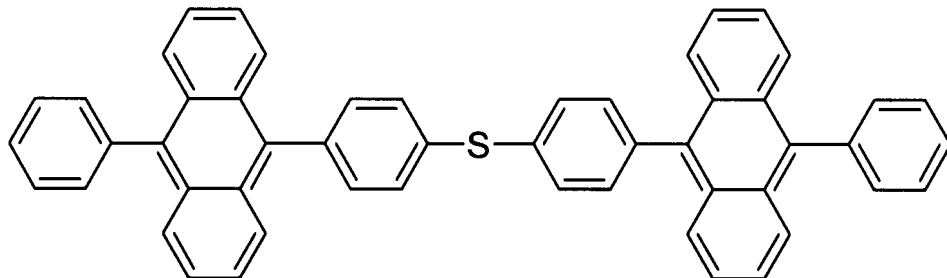
【化 1 7】



10



20



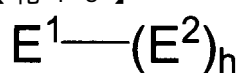
【 0 0 6 5 】

また、下記一般式 [1 2] で示されるアミン化合物も発光材料として有用である。

一般式 [1 2]

30

【化 1 8】



【 0 0 6 6 】

[式中、h は、価数であり 1 ~ 6 の整数を表す。E 1 は、n 価の芳香族炭化水素基、E 2 は、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。]

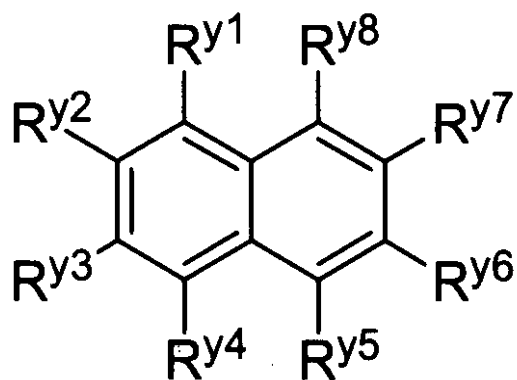
ここで、E 1 で示される n 価の芳香族炭化水素基の母体構造としては、ナフタレン、アントラセン、9 - フェニルアントラセン、9 , 10 - ジフェニルアントラセン、ナフタセン、ピレン、ペリレン、ピフェニル、ピナフチル、ピアンスリルが好ましく、E 1 で示されるアミノ基としては、ジアリールアミノ基が好ましい。また、n は、1 ~ 4 が好ましく、特に 2 であることが最も好ましい。一般式 [1 2] の内、特に以下の一般式 [1 3] ~ 一般式 [2 2] で表されるアミン化合物は好適である。

40

【 0 0 6 7 】

一般式 [1 3]

【化 1 9】



10

【 0 0 6 8】

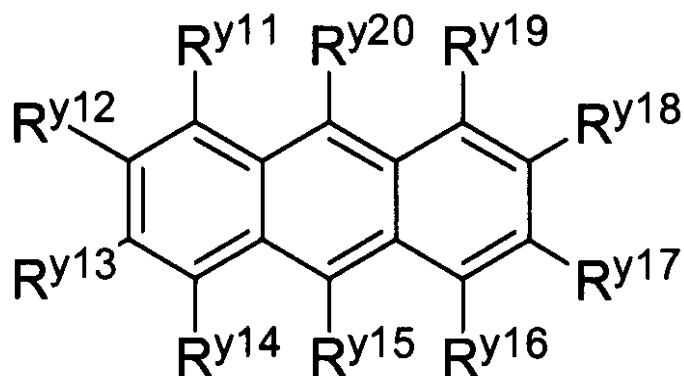
[式中、 $R^{y1} \sim R^{y8}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y1} \sim R^{y8}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。 $R^{y1} \sim R^{y8}$ は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

20

【 0 0 6 9】

一般式 [1 4]

【化 2 0】



30

【 0 0 7 0】

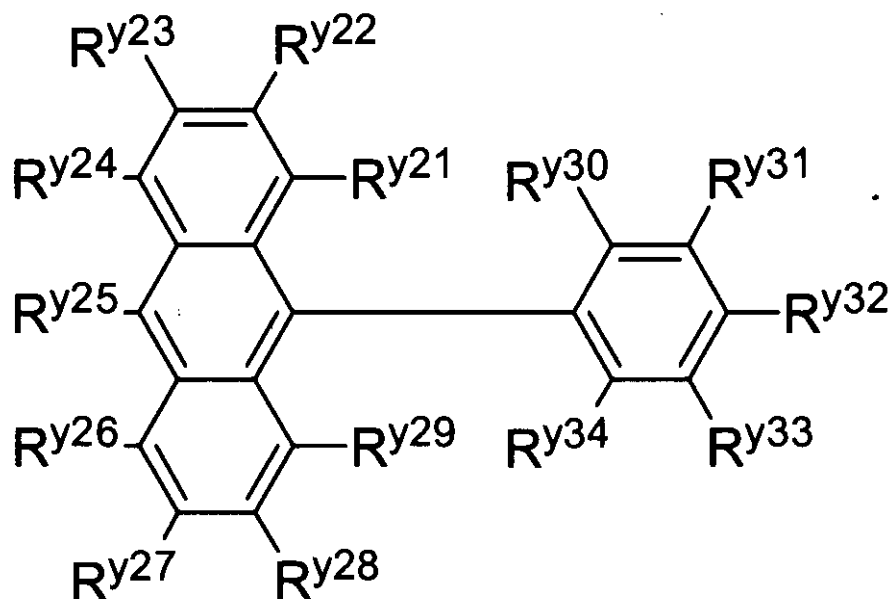
[式中、 $R^{y11} \sim R^{y20}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y11} \sim R^{y20}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。 $R^{y11} \sim R^{y20}$ は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

40

【 0 0 7 1】

一般式 [1 5]

【化 2 1】



10

【0072】

20

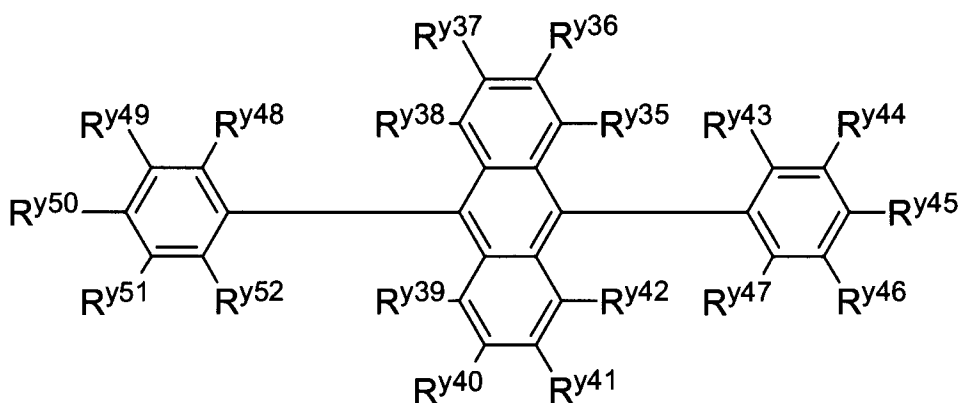
[式中、 $R^{y21} \sim R^{y34}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y21} \sim R^{y34}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。 $R^{y21} \sim R^{y34}$ は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

【0073】

一般式 [16]

【化 2 2】

30



40

【0074】

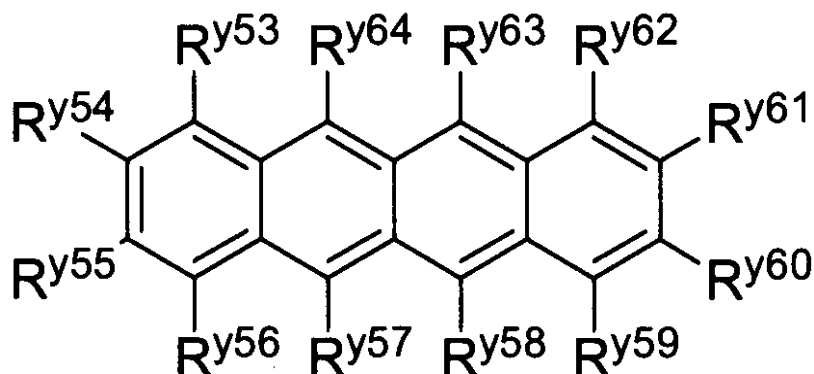
[式中、 $R^{y35} \sim R^{y52}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y35} \sim R^{y52}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。 $R^{y35} \sim R^{y52}$ は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

50

【 0 0 7 5 】

一般式 [1 7]

【 化 2 3 】



10

【 0 0 7 6 】

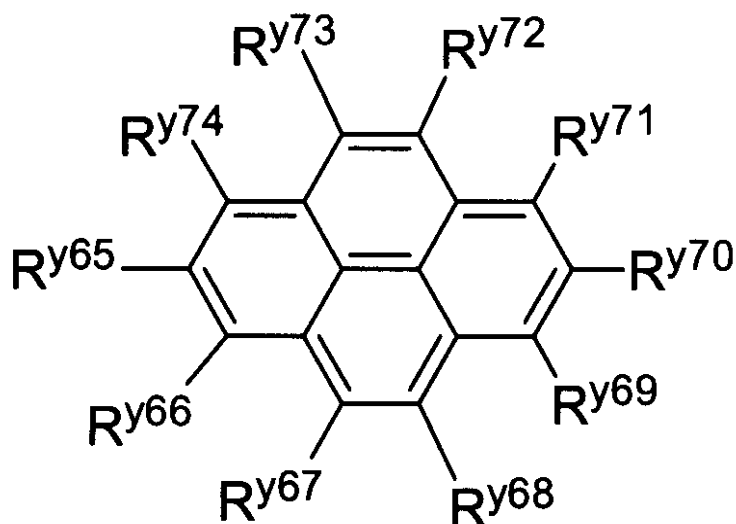
[式中、 $R^{y53} \sim R^{y64}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y53} \sim R^{y64}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。 $R^{y53} \sim R^{y64}$ は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

20

【 0 0 7 7 】

一般式 [1 8]

【 化 2 4 】



30

40

【 0 0 7 8 】

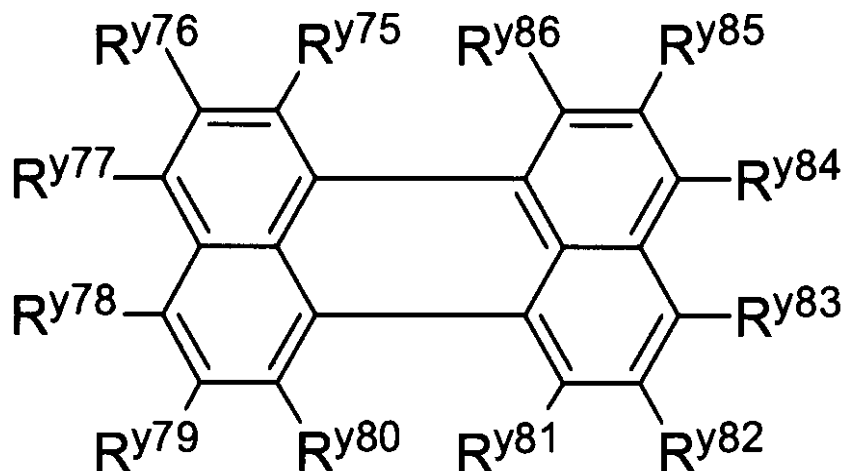
[式中、 $R^{y65} \sim R^{y74}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y65} \sim R^{y74}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。 $R^{y65} \sim R^{y74}$ は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

【 0 0 7 9 】

50

一般式 [1 9]

【化 2 5】



10

【 0 0 8 0 】

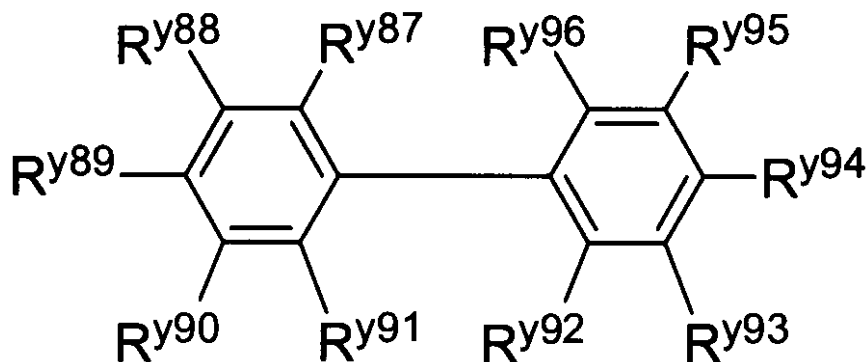
[式中、 $R^{y75} \sim R^{y86}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y75} \sim R^{y86}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。 $R^{y75} \sim R^{y86}$ は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

20

【 0 0 8 1 】

一般式 [2 0]

【化 2 6】



30

【 0 0 8 2 】

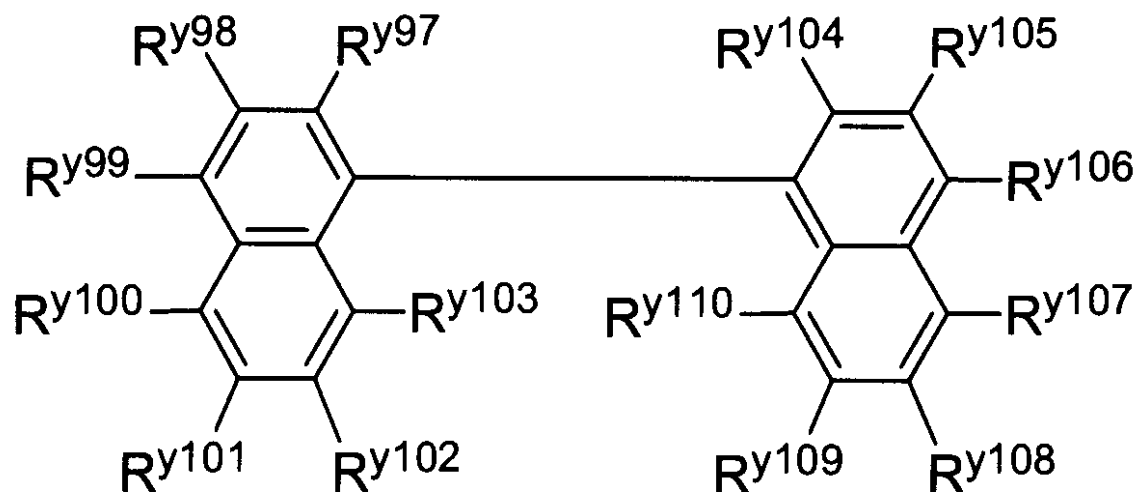
[式中、 $R^{y87} \sim R^{y96}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1価の脂肪族複素環基、1価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y87} \sim R^{y96}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。 $R^{y87} \sim R^{y96}$ は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

40

【 0 0 8 3 】

一般式 [2 1]

【化 2 7】



10

【0084】

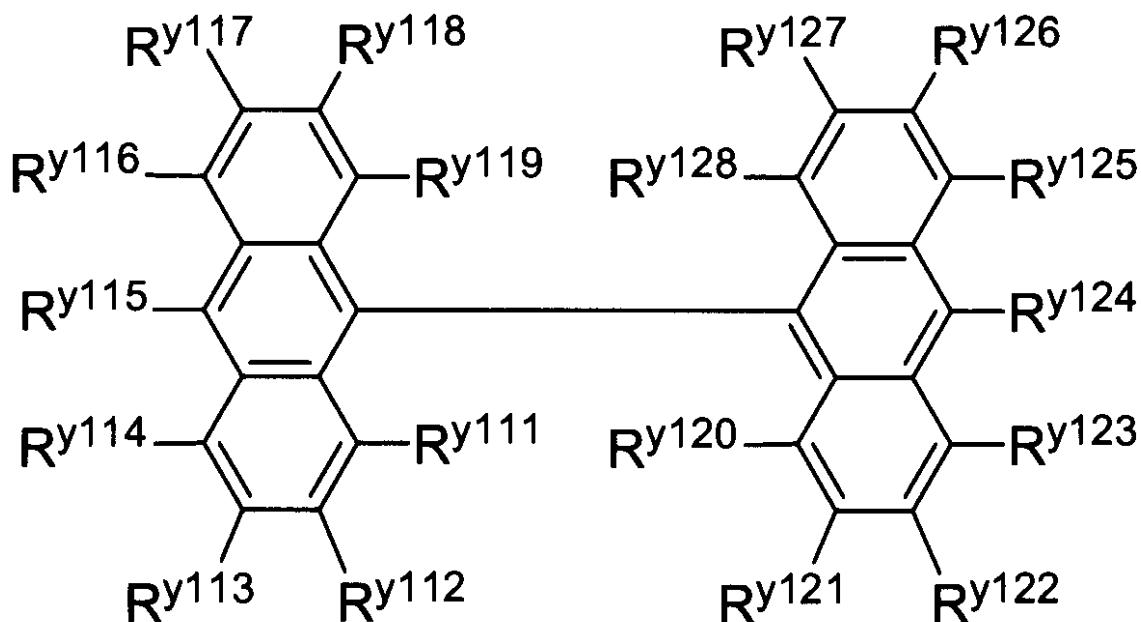
[式中、 $R^{y97} \sim R^{y110}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1 価の脂肪族複素環基、1 価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y97} \sim R^{y110}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。 $R^{y97} \sim R^{y110}$ は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

20

【0085】

一般式 [2 2]

【化 2 8】



30

40

【0086】

[式中、 $R^{y111} \sim R^{y128}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、1 価の脂肪族複素環基、1 価の芳香族複素環基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y111} \sim R^{y128}$ の内、少なくとも一つは、ジ

50

ルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表す。R^{y111} ~ R^{y128}は同一でも異なるもので良く、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。]

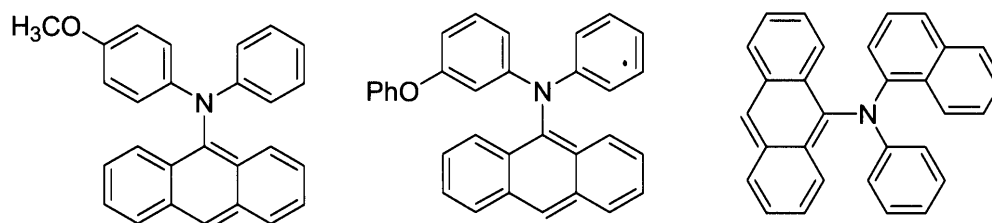
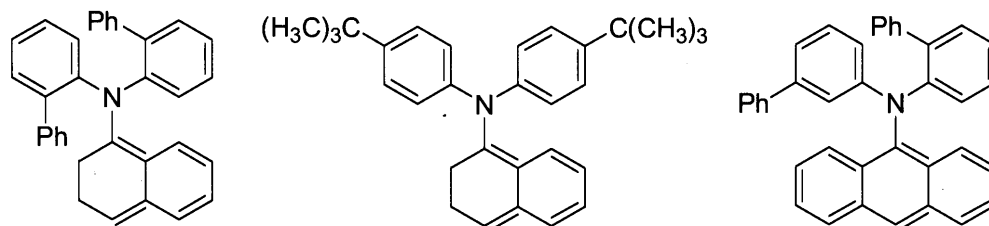
【 0 0 8 7 】

上述した一般式 [1 7] および一般式 [1 9] のアミン化合物は、黄色 ~ 赤色発光を得る場合、好適に用いることができる。以上述べた一般式 [1 2] ~ 一般式 [2 2] で表されるアミン化合物の具体例として下記構造の化合物をあげることができる（ただし、Phはフェニル基を表す）。

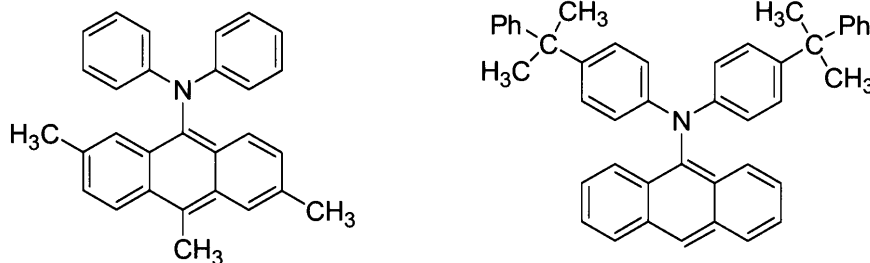
【 0 0 8 8 】

【 化 2 9 】

10



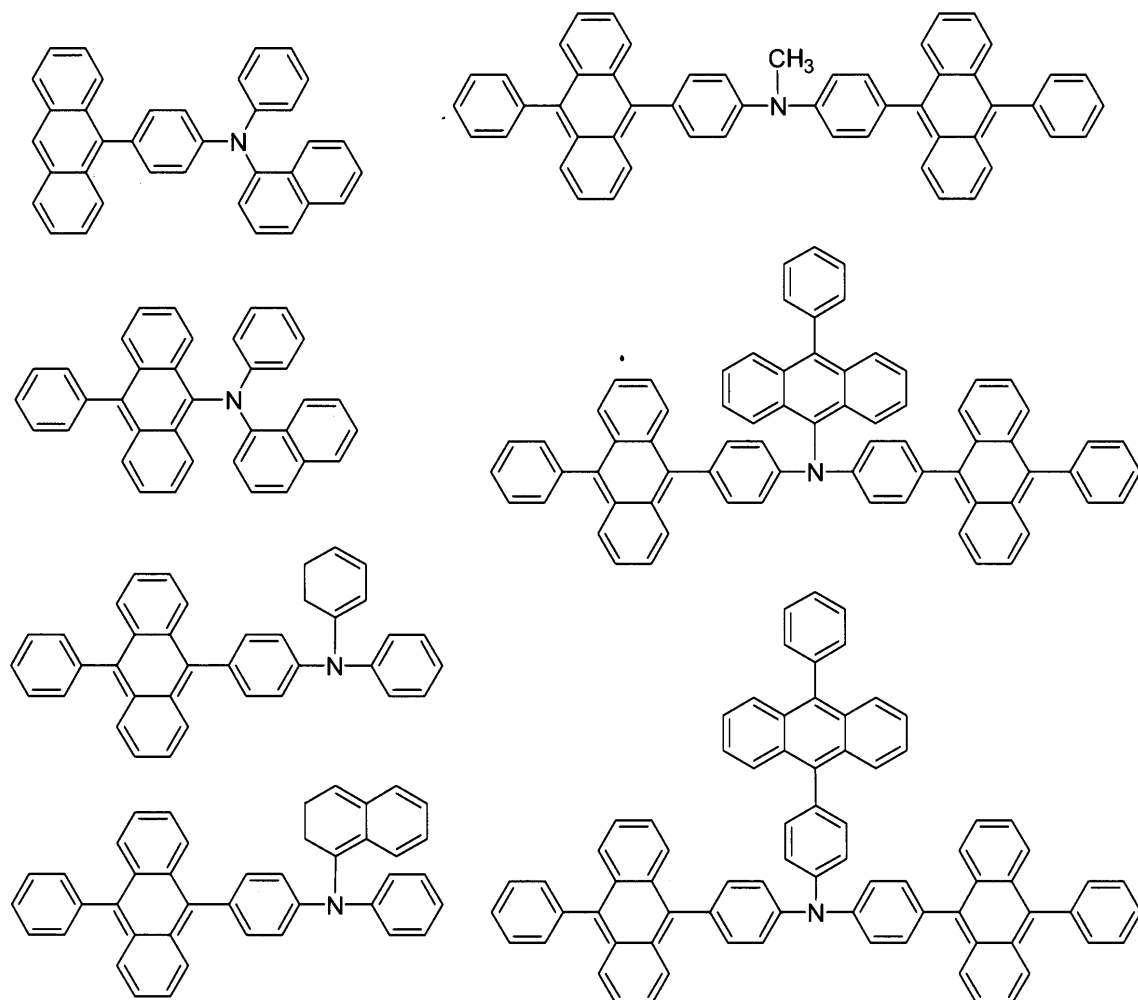
20



30

【 0 0 8 9 】

【化 3 0】

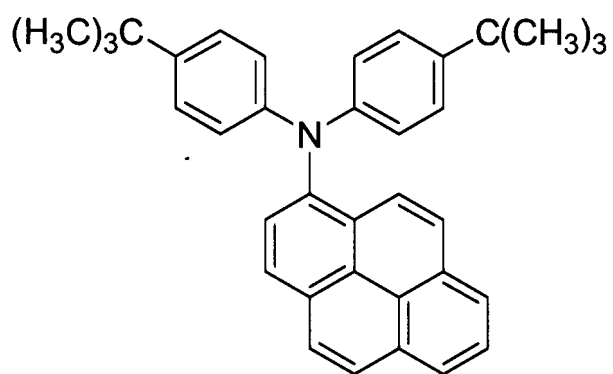
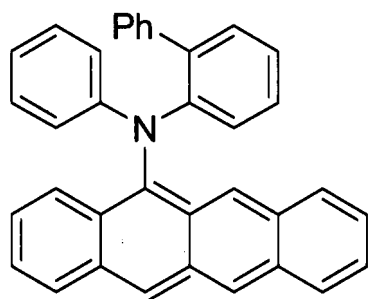


10

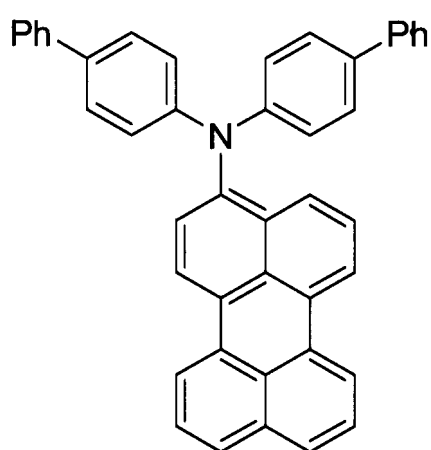
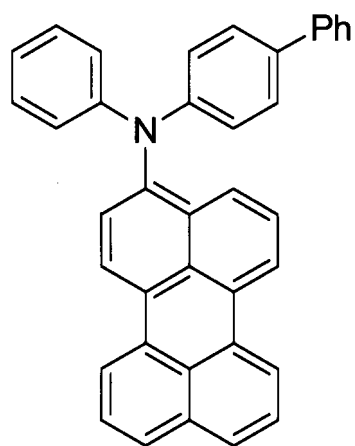
20

【 0 0 9 0】

【化 3 1】



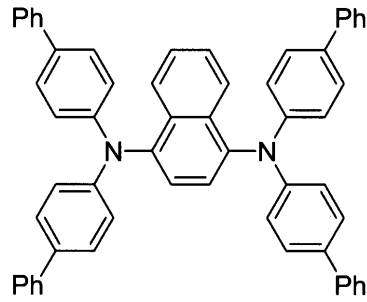
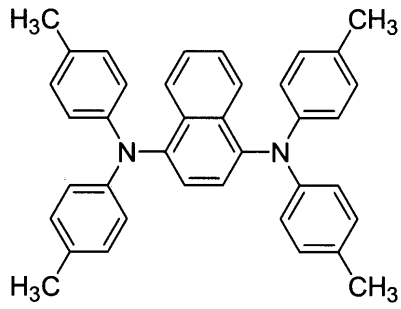
10



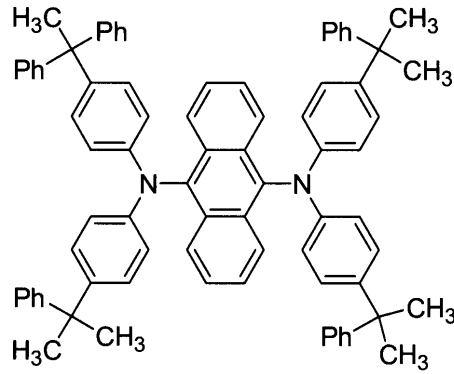
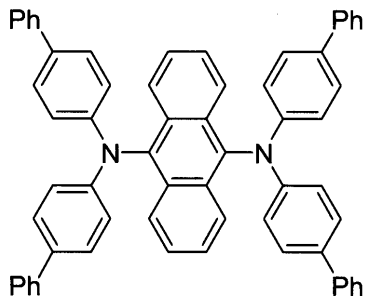
20

【 0 0 9 1 】

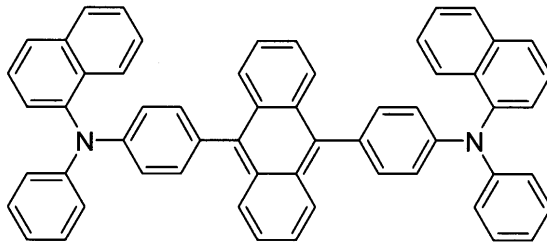
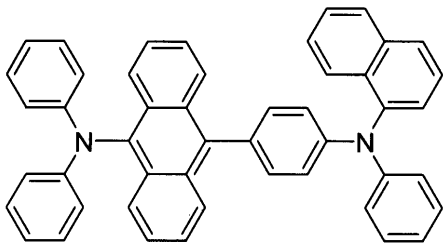
【化 3 2】



10



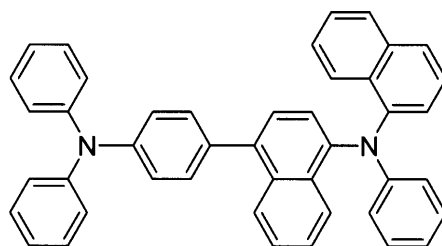
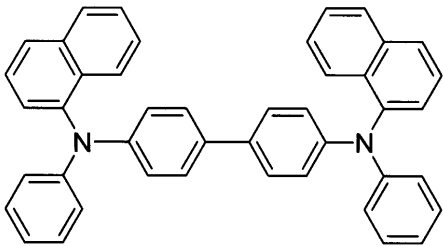
20



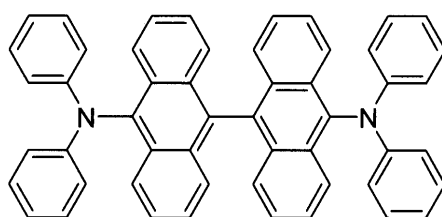
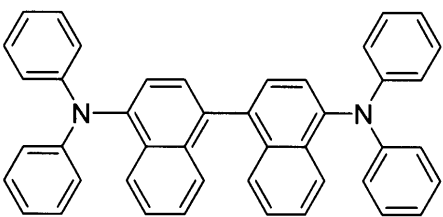
30

【 0 0 9 2 】

【化 3 3】



40



【 0 0 9 3 】

また、上記一般式 [1 2] ~ 一般式 [2 2] において、アミノ基の代わりに、下記一般

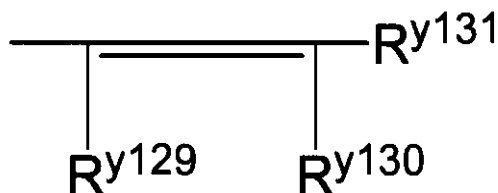
50

式〔23〕ないし一般式〔24〕で表されるスチリル基を少なくとも一つ含有する化合物（例えば、欧州特許第0388768号明細書、特開平3-231970号公報などに開示のものを含む）も発光材料として好適に用いることができる。

【0094】

一般式〔23〕

【化34】



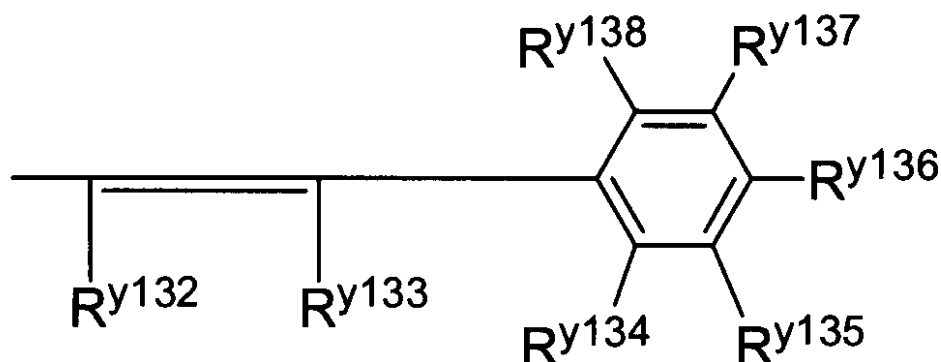
10

〔式中、 $R^{y129} \sim R^{y131}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、1価の芳香族炭化水素基を表す。 $R^{y129} \sim R^{y131}$ は、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。〕

【0095】

一般式〔24〕

【化35】



20

【0096】

〔式中、 $R^{y132} \sim R^{y138}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、1価の芳香族炭化水素基を表す。 $R^{y134} \sim R^{y138}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、1価の芳香族炭化水素基、もしくは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基を表すが、 $R^{y134} \sim R^{y138}$ の内、少なくとも一つは、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基から選ばれるアミノ基である。 $R^{y132} \sim R^{y138}$ は、隣り合う基同士が連結し、環を形成していても良い。〕

30

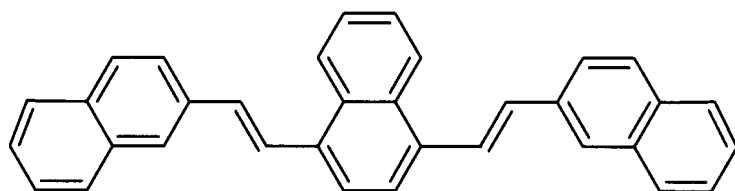
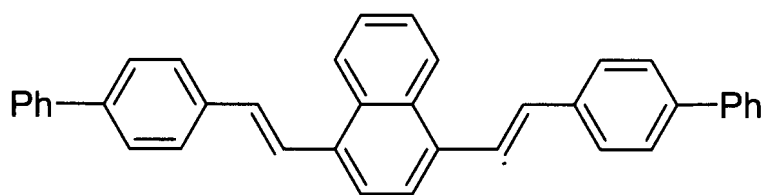
【0097】

以上述べた一般式〔23〕ないし一般式〔24〕で表されるスチリル基を少なくとも一つ含有する化合物の具体例として下記構造の化合物をあげることができる（ただし、Phはフェニル基を表す）。

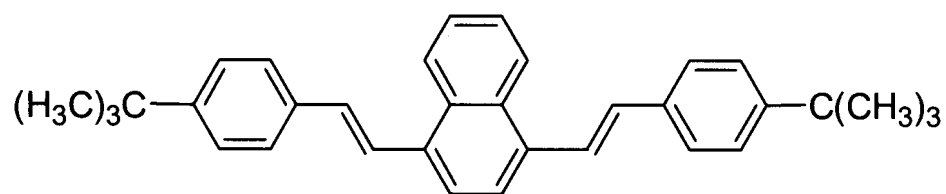
40

【0098】

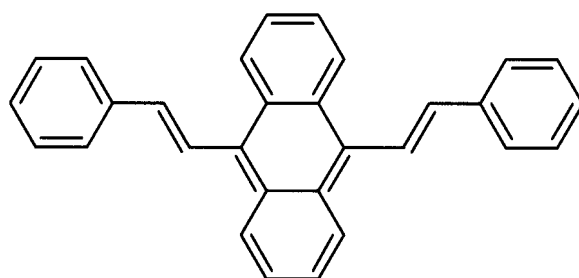
【化 3 6】



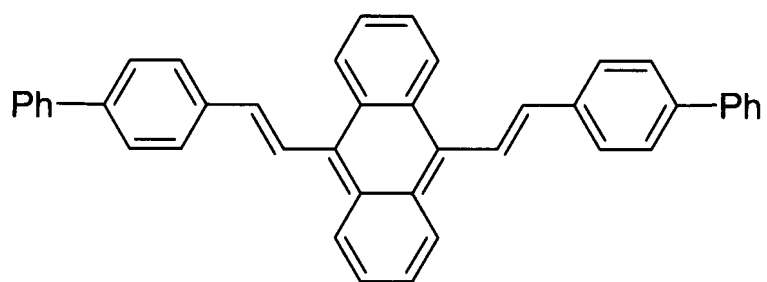
10



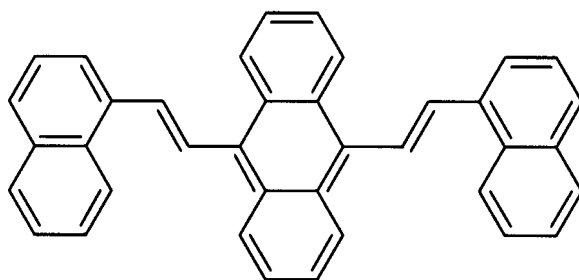
20



30

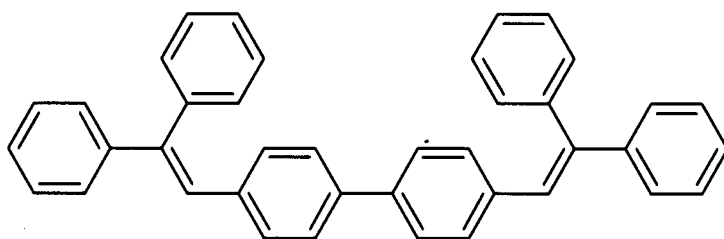


40

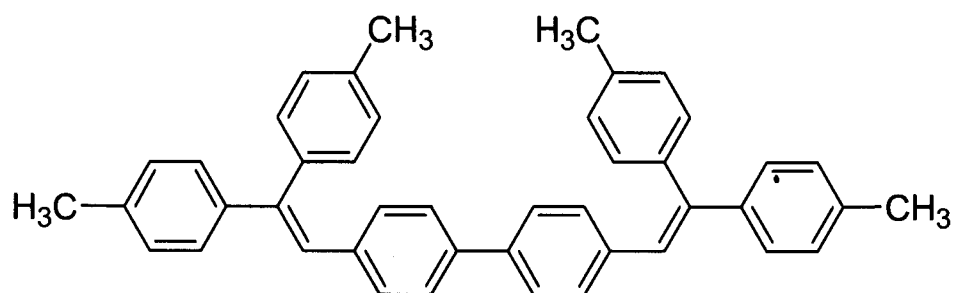


【 0 0 9 9 】

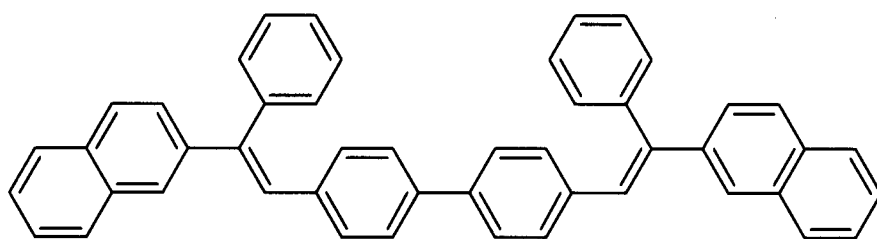
【化 3 7】



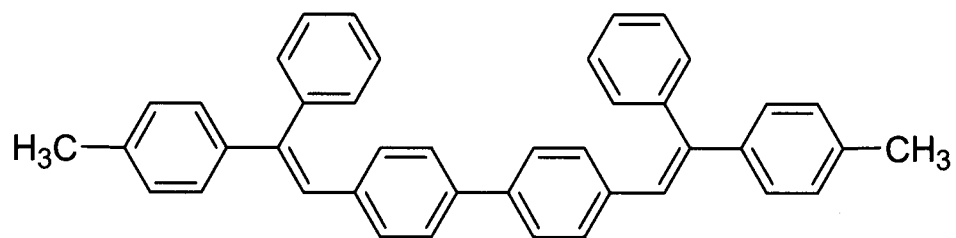
10



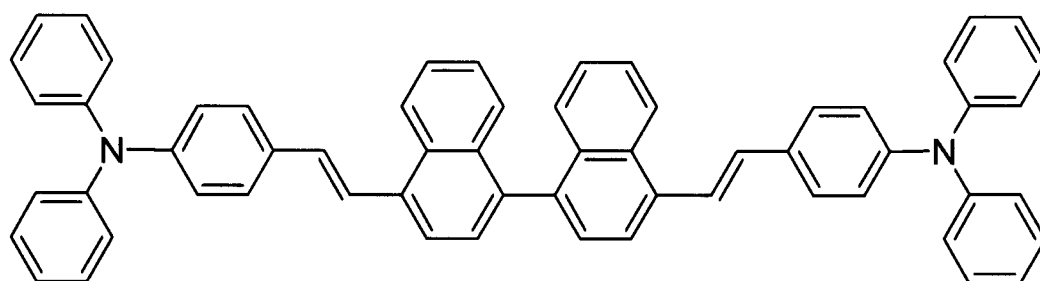
20



30

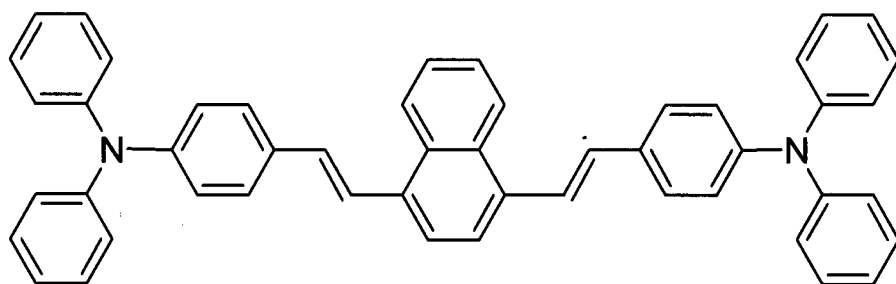


40

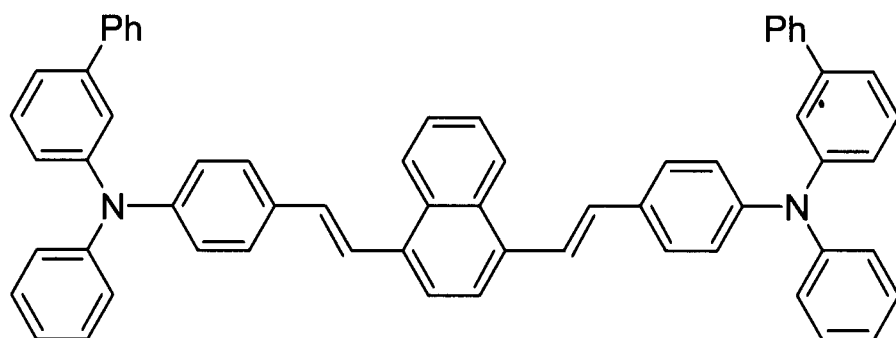


【 0 1 0 0 】

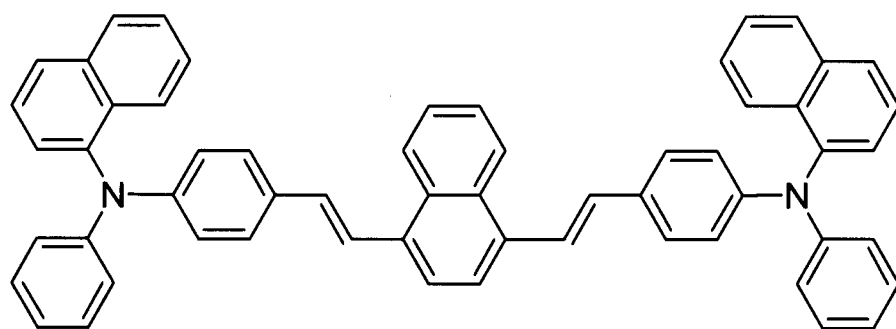
【化 3 8】



10



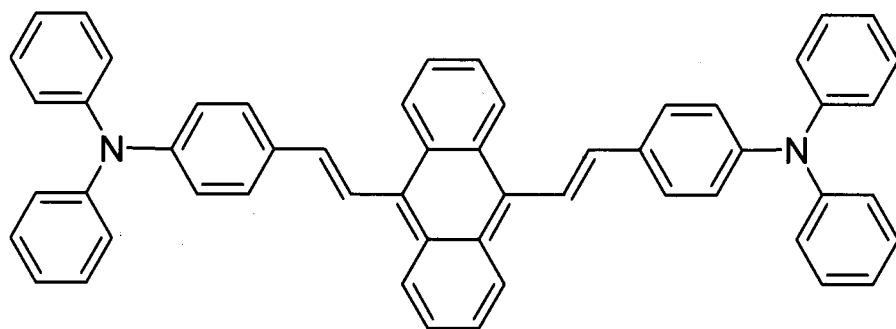
20



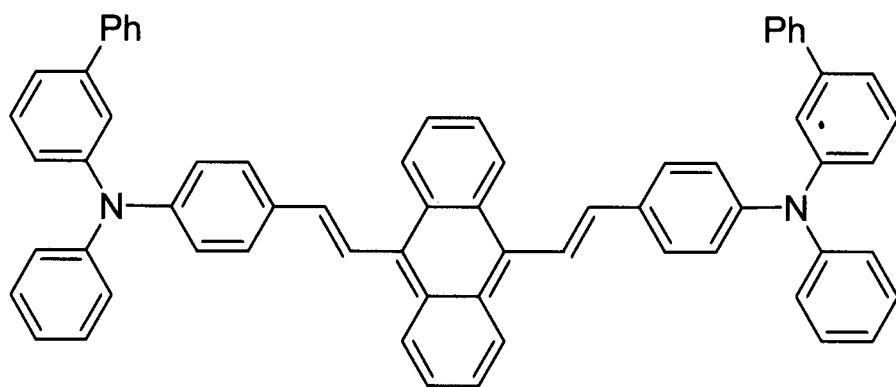
30

【 0 1 0 1 】

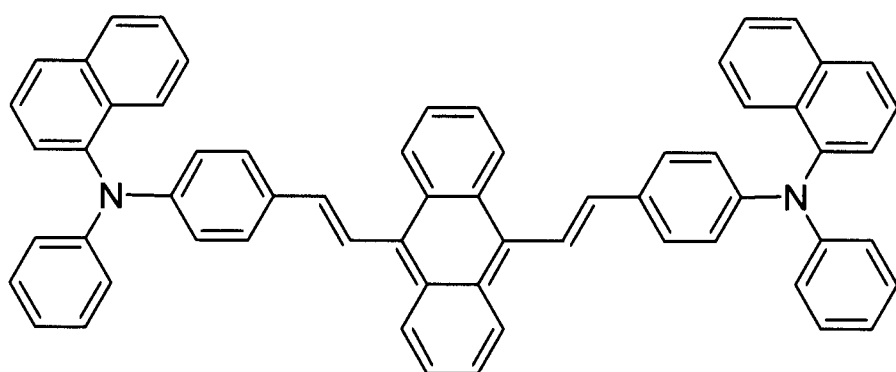
【化 3 9】



10



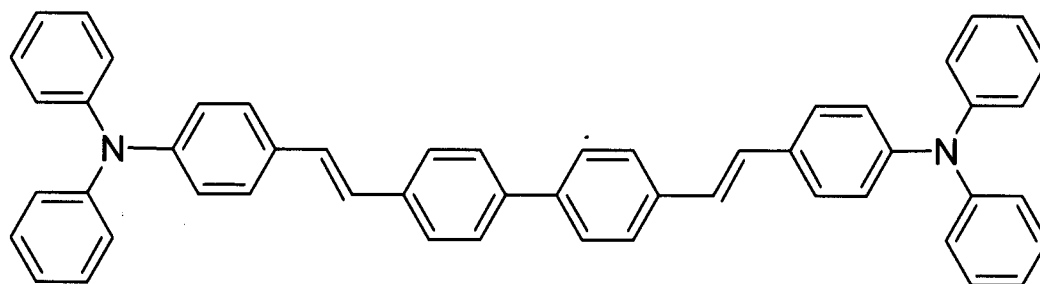
20



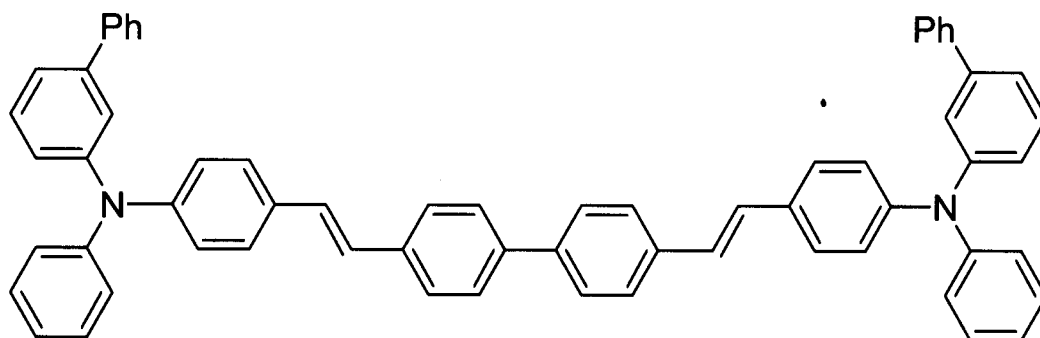
30

【 0 1 0 2 】

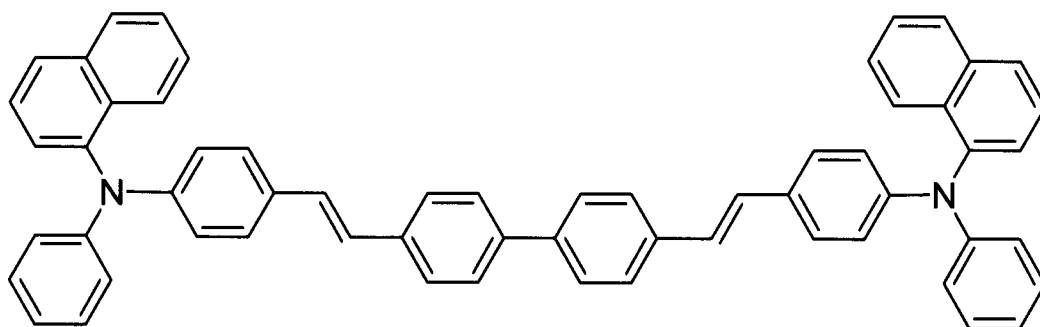
【化 4 0】



10



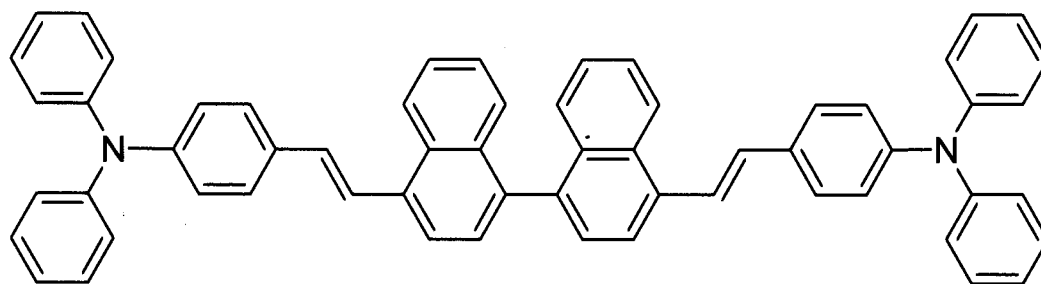
20



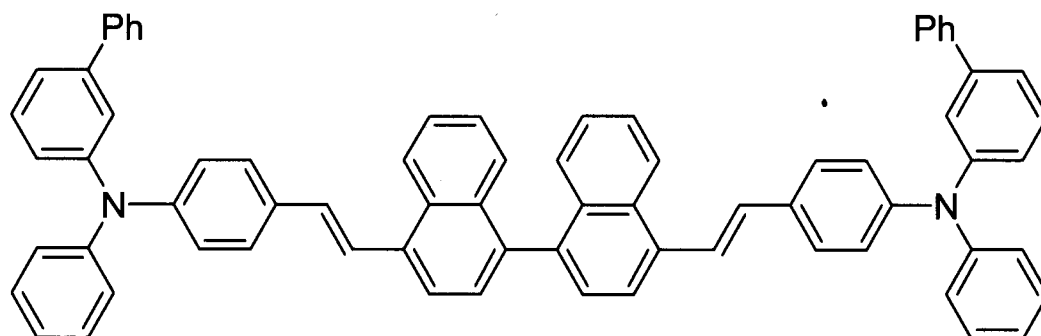
30

【 0 1 0 3】

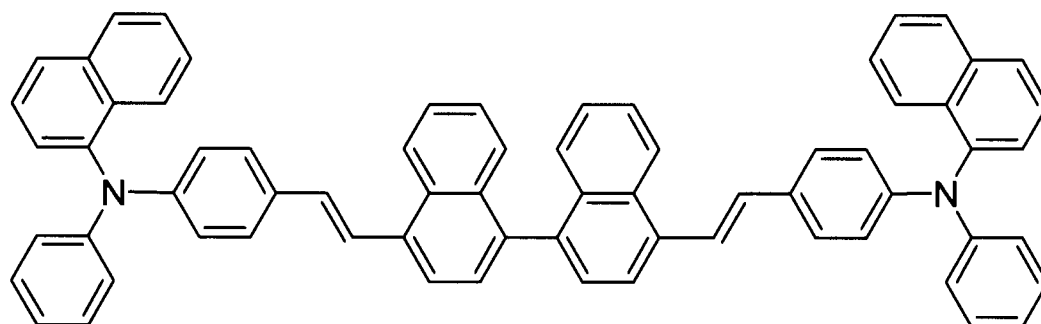
【化 4 1】



10



20



30

【0104】

また、特開平5-258862号公報等に記載されている一般式 $(R_s - Q)_2 - Al - O - L$ 〔式中、Lはフェニル部分を含んでなる炭素原子6～24個の炭化水素であり、O-Lはフェノラート配位子であり、Qは置換8-キノリノラート配位子を示し、 R_s はアルミニウム原子に置換8-キノリノラート配位子が2個を上回り結合するのを立体的に妨害するように選ばれた8-キノリノラート環置換基を示す〕で表される化合物も挙げられる。具体的には、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(パラ-フェニルフェノラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム(III)等が挙げられる。

40

【0105】

このほか、特開平6-9953号公報等によるドーピングを用いた高効率の青色と緑色の混合発光を得る方法が挙げられる。この場合、ホストとしては、上記の発光材料、ドーパントとしては青色から緑色までの強い蛍光色素、例えばクマリン系あるいは上記のホストとして用いられているものと同様な蛍光色素を挙げることができる。具体的には、ホストとしてジスチリルアリーレン骨格の発光材料、特に好ましくは4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ピフェニル、ドーパントとしてはジフェニルアミノビニルアリーレン、特に好ましくは例えばN,N-ジフェニルアミノビニルベンゼンを挙げることができる。

50

【 0 1 0 6 】

白色の発光を得る発光層としては特に制限はないが、下記のものを用いることができる。

有機 E L 積層構造体の各層のエネルギー準位を規定し、トンネル注入を利用して発光させるもの（欧州特許第 0 3 9 0 5 5 1 号公報）。

同じくトンネル注入を利用する素子で実施例として白色発光素子が記載されているもの（特開平 3 - 2 3 0 5 8 4 号公報）。

二層構造の発光層が記載されているもの（特開平 2 - 2 2 0 3 9 0 号公報および特開平 2 - 2 1 6 7 9 0 号公報）。

発光層を複数に分割してそれぞれ発光波長の異なる材料で構成されたもの（特開平 4 - 5 1 4 9 1 号公報）。

青色発光体（蛍光ピーク 3 8 0 ~ 4 8 0 n m ）と緑色発光体（ 4 8 0 ~ 5 8 0 n m ）とを積層させ、さらに赤色蛍光体を含むさせた構成のもの（特開平 6 - 2 0 7 1 7 0 号公報）。

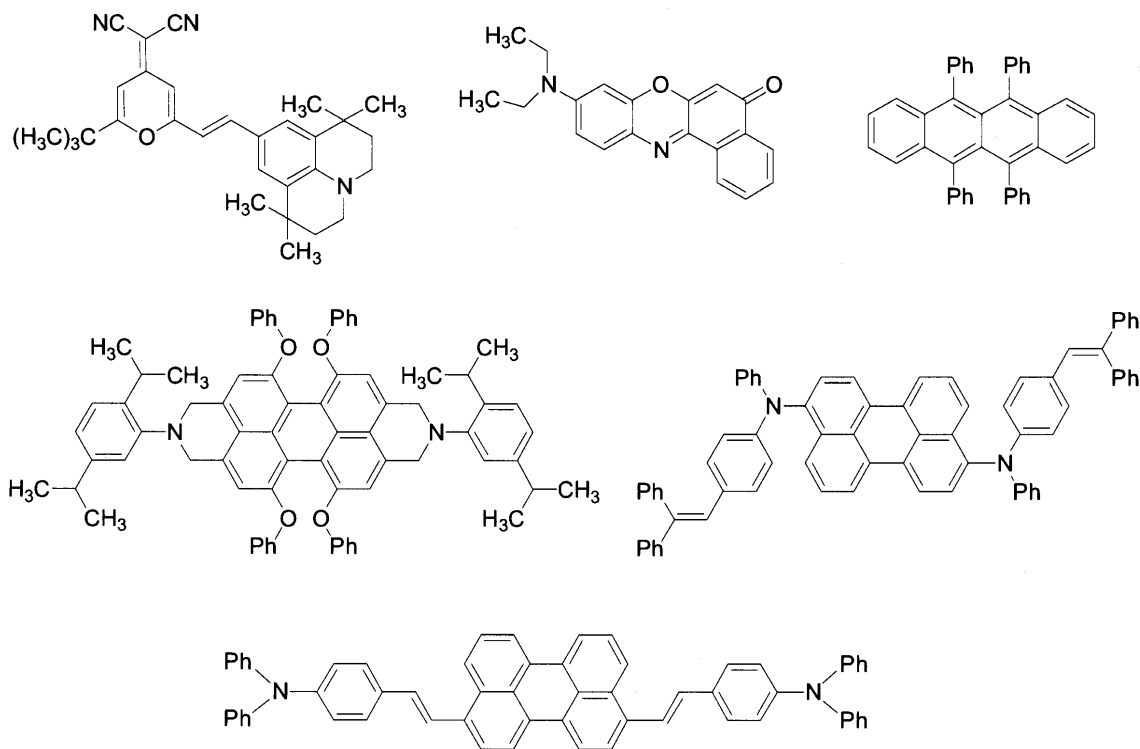
青色発光層が青色蛍光色素を含有し、緑色発光層が赤色蛍光色素を含有した領域を有し、さらに緑色蛍光体を含む構成のもの（特開平 7 - 1 4 2 1 6 9 号公報）。

これらの中では、上記の構成のものが特に好ましい。

【 0 1 0 7 】

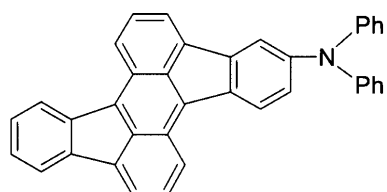
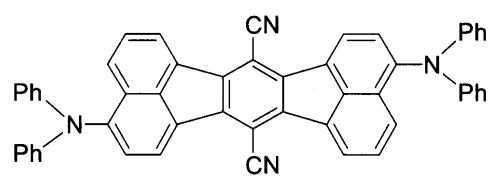
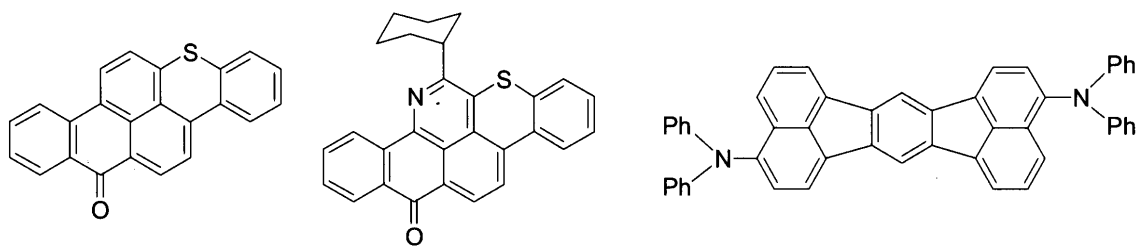
さらに、発光材料として、例えば、下記に示す公知の化合物が好適に用いられる（ただし、Ph はフェニル基を表す）。

【化 4 2】

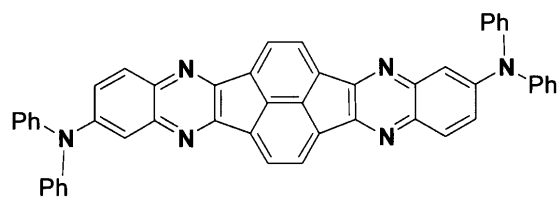
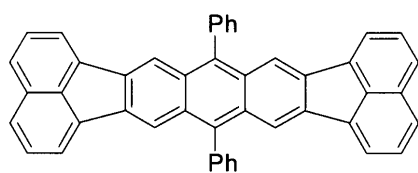


【 0 1 0 8 】

【化 4 3】



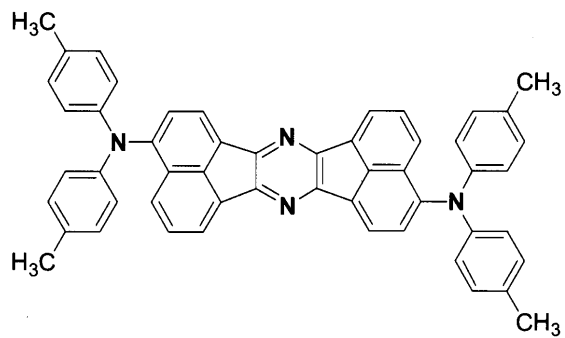
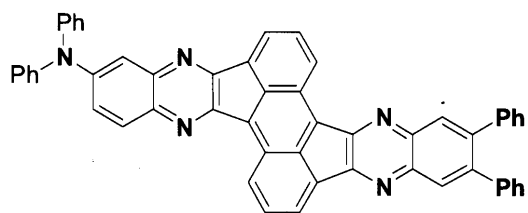
10



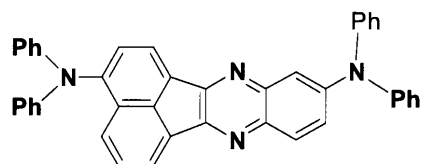
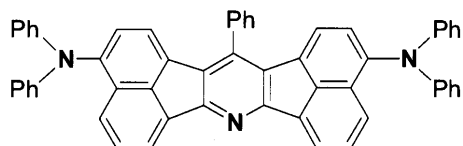
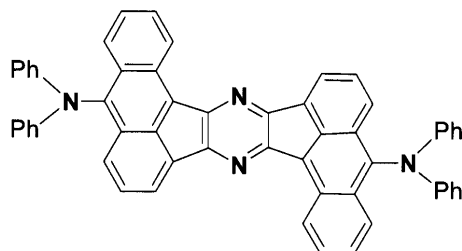
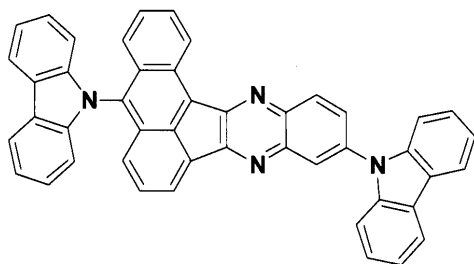
20

【 0 1 0 9 】

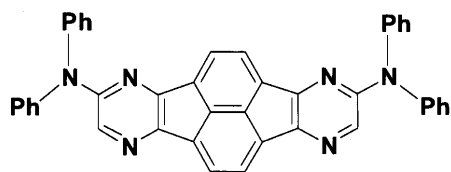
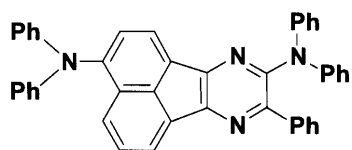
【化 4 4】



10



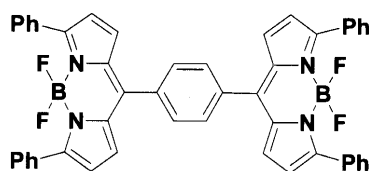
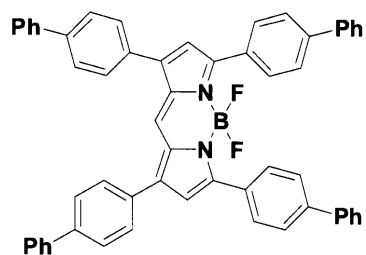
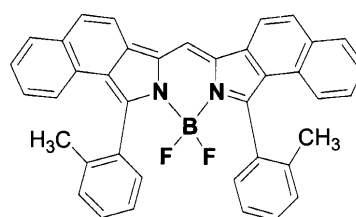
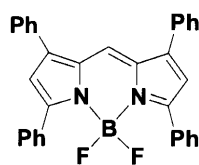
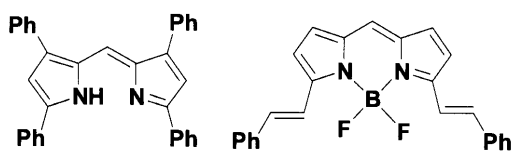
20



30

【 0 1 1 0 】

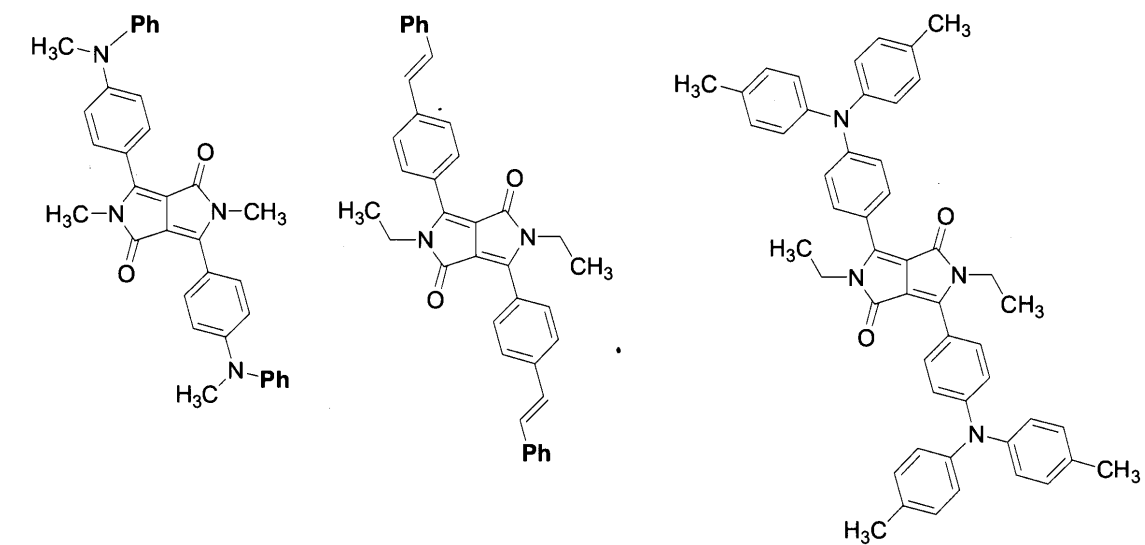
【化 4 5】



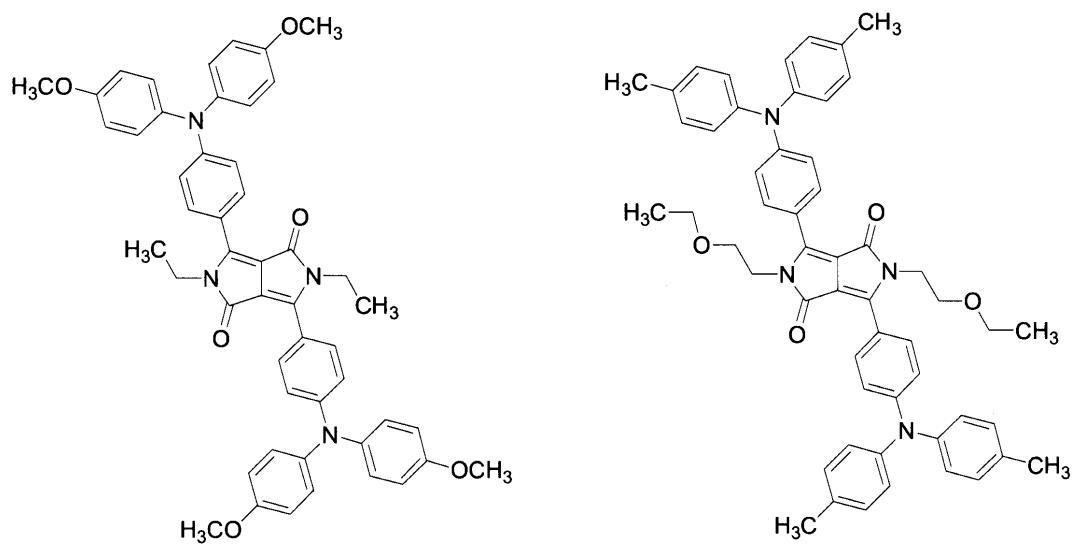
40

【 0 1 1 1 】

【化 4 6】



10

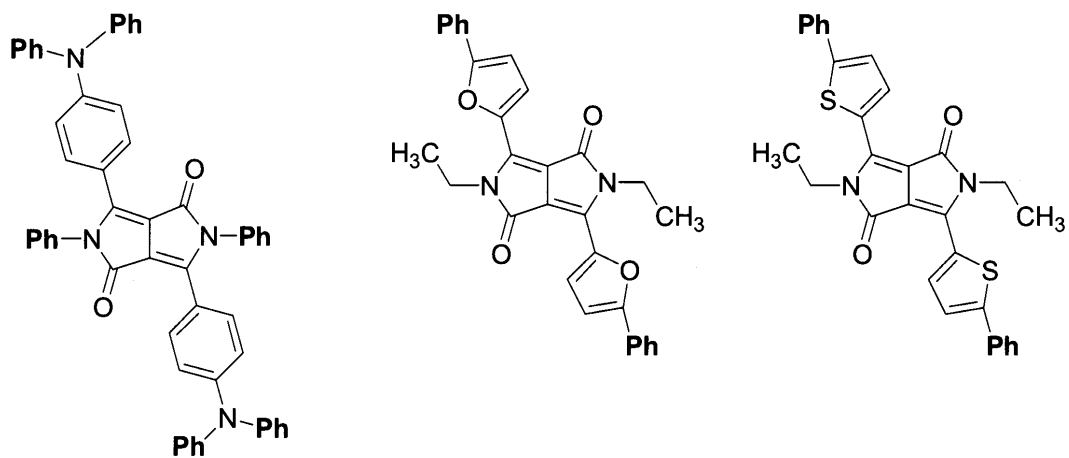


20

30

【 0 1 1 2 】

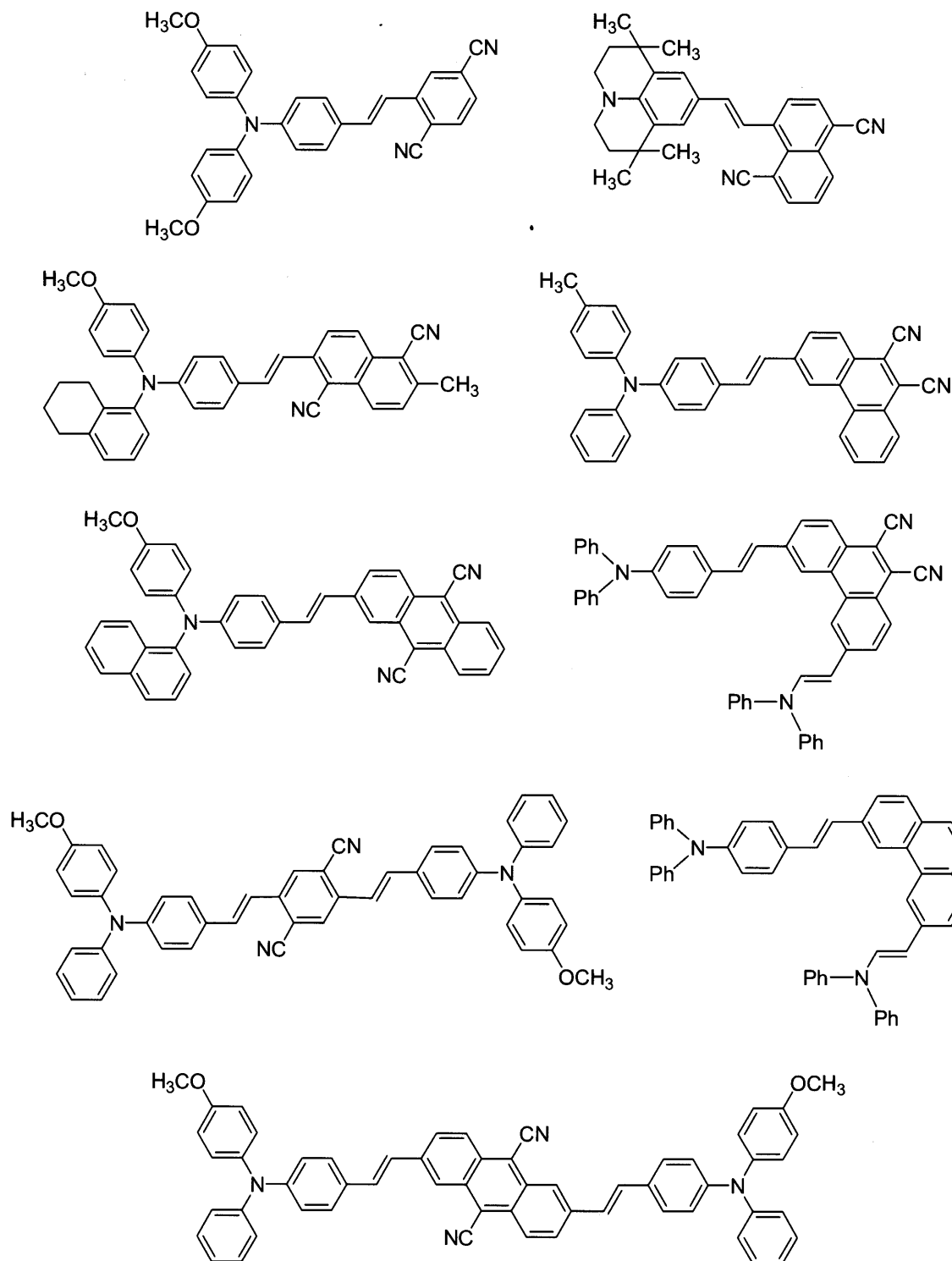
【化 4 7】



40

【 0 1 1 3 】

【化 4 8】



10

20

30

40

【0114】

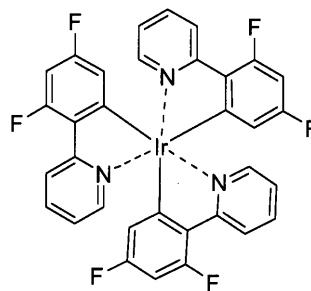
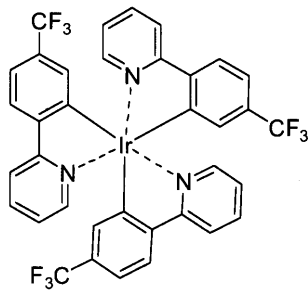
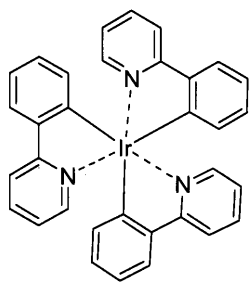
また、本発明の有機EL素子では、リン光発光材料を用いることができる。本発明の有機EL素子に使用できるリン光発光材料またはドーピング材料としては、例えば有機金属錯体があげられ、ここで金属原子は通常、遷移金属であり、好ましくは周期では第5周期または第6周期、族では6族から11族、さらに好ましくは8族から10族の元素が対象となる。具体的にはイリジウムや白金などである。また、配位子としては2-フェニルピリジンや2-(2'-ベンゾチエニル)ピリジンなどがあり、これらの配位子上の炭素原子が金属と直接結合しているのが特徴である。別の例としてはポルフィリンまたはテトラアザポルフィリン環錯体などがあり、中心金属としては白金などがあげられる。例えば、下記に示す公知の化合物がリン光発光材料として好適に用いられる(ただし、Phはフェ

50

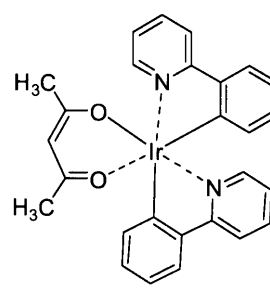
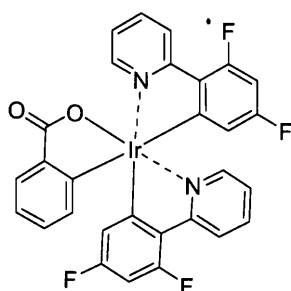
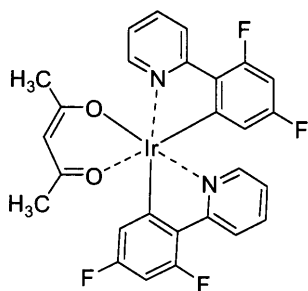
ニル基を表す)。

【 0 1 1 5 】

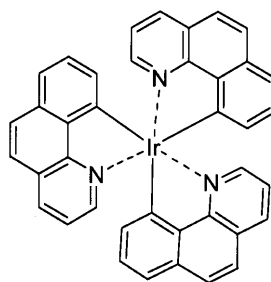
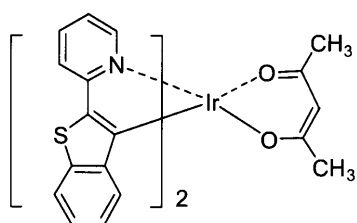
【 化 4 9 】



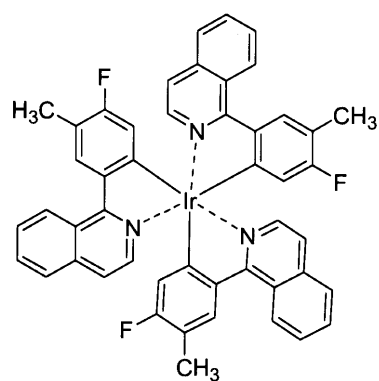
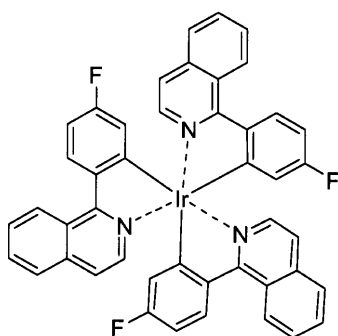
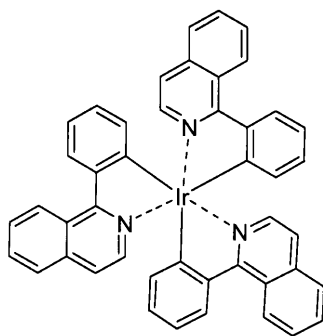
10



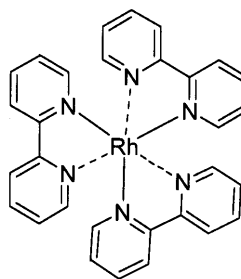
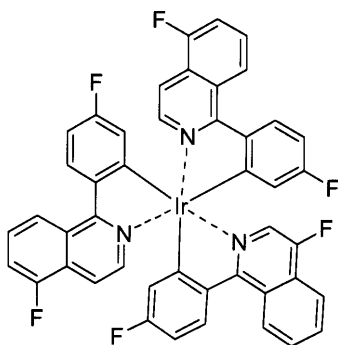
20



30



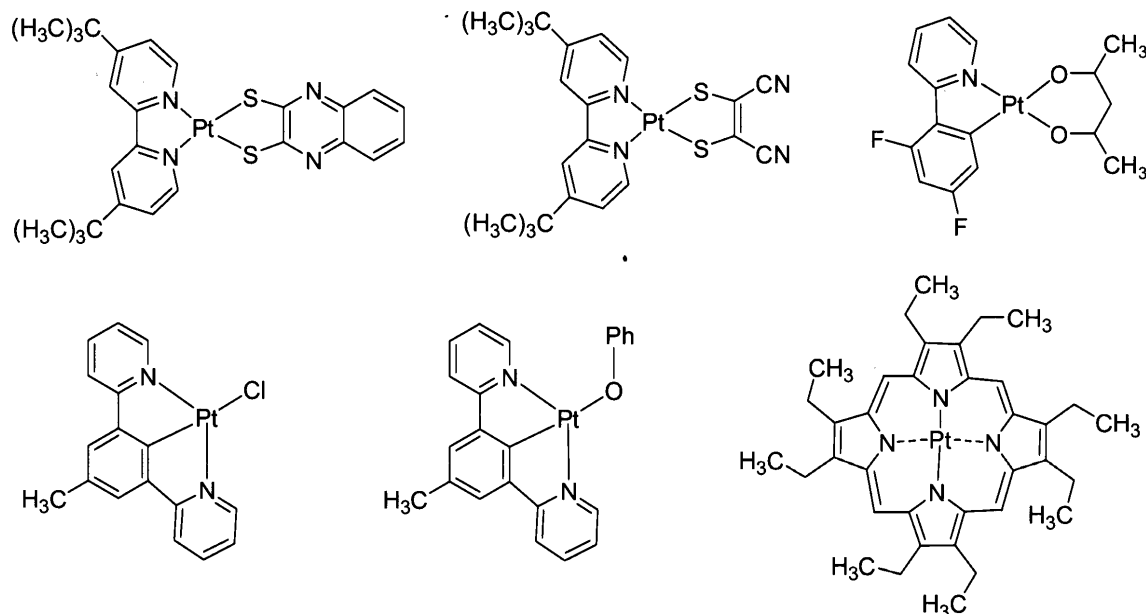
40



【 0 1 1 6 】

50

【化 5 0】



10

【0 1 1 7】

さらに、本発明の有機EL素子の陽極に使用される材料は、仕事関数の大きい(4 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物またはこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au、Ag、Al、Cr等の金属、CuI、ITO(Indium tin oxide)、IZO(Indium zinc oxide)、 SnO_2 、ZnO、 In_2O_3 -ZnO等の導電性材料が挙げられる。この陽極を形成するには、これらの電極物質を、蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることができる。この陽極は、上記発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくなるような特性を有していることが望ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 $\Omega/\square$ 以下としてあるものが好ましい。さらに、陽極の膜厚は、材料にもよるが通常10 nm~1 μm 、好ましくは10~200 nmの範囲で選択される。

20

30

【0 1 1 8】

また、本発明の有機EL素子の陰極に使用される材料は、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。この陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、形成することができる。ここで、発光層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、さらに、膜厚は通常10 nm~1 μm 、好ましくは50~200 nmである。

40

【0 1 1 9】

有機EL素子は、透光性の基板上に作製する。この透光性基板は有機EL素子を支持する基板であり、その透光性については、400~700 nmの可視領域の光の透過率が50%以上、好ましくは90%以上であるものが望ましく、さらに平滑な基板を用いるのが好ましい。これら基板は、機械的、熱的強度を有し、透明であれば特に限定されるものではないが、例えば、ガラス板、合成樹脂板などが好適に用いられる。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、石英などで成形された板が挙げられる。また、合成樹脂板としては、ポリカーボネート樹脂、アクリル樹脂、ポリエチ

50

レンテレフタレート樹脂、ポリエーテルサルファイド樹脂、ポリサルフォン樹脂などの板が挙げられる。

【0120】

また、有機EL素子の温度、湿度、雰囲気等に対する安定性向上のために、素子の表面に保護層を設けたり、樹脂等により素子全体を被覆や封止を施したりしても良い。特に素子全体を被覆や封止する際には、光によって硬化する光硬化性樹脂が好適に使用される。

【0121】

本発明の有機EL素子に印加する電流は通常、直流であるが、パルス電流や交流を用いてもよい。電流値、電圧値は、素子破壊しない範囲内であれば特に制限はないが、素子の消費電力や寿命を考慮すると、なるべく小さい電気エネルギーで効率良く発光させることが望ましい。

10

【0122】

本発明の有機EL素子の駆動方法は、パッシブマトリクス法のみならず、アクティブマトリクス法での駆動も可能である。また、本発明の有機EL素子から光を取り出す方法としては、陽極側から光を取り出すボトム・エミッションという方法のみならず、陰極側から光を取り出すトップ・エミッションという方法にも適用可能である。これらの方法や技術は、城戸淳二著、「有機ELのすべて」、日本実業出版社（2003年発行）に記載されている。

【0123】

さらに、本発明の有機EL素子は、マイクロキャビティ構造を採用しても構わない。これは、有機EL素子は、発光層が陽極と陰極との間に挟持された構造であり、発光した光は陽極と陰極との間で多重干渉を生じるが、陽極及び陰極の反射率、透過率などの光学的な特性と、これらに挟持された有機層の膜厚とを適当に選ぶことにより、多重干渉効果を積極的に利用し、素子より取り出される発光波長を制御するという技術である。これにより、発光色度を改善することも可能となる。この多重干渉効果のメカニズムについては、J. Yamada等によるAM-LCD Digest of Technical Papers, O D - 2, p. 77 ~ 80 (2002)に記載されている。

20

【実施例】

【0124】

以下、本発明を実施例で説明するが、本発明はこれら実施例になんら限定されるものではない。まず実施例に先だって原料に用いるGaq3の合成例を示す。

30

【0125】

（原料の合成）

合成例1

ガリウムトリイソプロポキシド2.581gと純度99%の8-オキシキノリン4.778gとをトルエン60gに加え、窒素雰囲気下、70℃で2時間攪拌した。放冷後、析出した固形物を濾過、乾燥して粗製Gaq3 5.23gを得た。次に、この粗製Gaq3 2.27gを昇華部温度330℃、析出部温度220℃、圧力 5×10^{-3} Paにて昇華してGaq3を2.20g得た。

【0126】

（有機EL材料の製造方法）

40

実施例1

合成例1で得たGaq3 1gを、昇華装置の昇華部に仕込んだ。次いで、昇華装置内を真空ポンプで排気した後、純度99.99%の窒素を吸気した。この排気と吸気を3回繰り返し、昇華装置内部の圧力を760Torrにした。次いで、昇華部の温度を 365 ± 5 ℃にて5分間保持した後、50℃になるまで放冷した。次いで、昇華装置内部の圧力を2Torrまで減圧し、昇華部温度を400℃、析出部温度を50℃に設定し、昇華を行った。室温になるまで放冷した後、昇華装置内部の圧力を大気圧にし、析出部に付着した析出物を回収した。その後、25℃の環境下で、回収物5mgにトルエン（JIS試薬一級）100mLを加え、3分間激しく振とうしたところ、回収物は完全にトルエンに溶解しないことを確認した。

【0127】

50

実施例 2 ～ 実施例 8

以下に示す表 1 の条件に変更した以外は、実施例 1 と同様にして有機 EL 材料を製造した。尚、表 1 中の温度は相当する部分での温度を表し、いずれも ± 5 以内の温度範囲で制御されている。得られた有機 EL 材料について、25、トルエンに対する溶解度を併せて表 1 に示したが、いずれの有機 EL 材料も溶解度が 0.05 g/L 以下であった。

【0128】

【表 1】

実施例	第 1 工程での昇華部の温度 ($^{\circ}\text{C}$)	第 2 工程での昇華部の温度 ($^{\circ}\text{C}$)	第 2 工程での回収部の温度 ($^{\circ}\text{C}$)	有機 EL 材料の溶解度 (g/L) ^{注)}
1	365	400	50	<0.05
2	385	400	50	<0.01
3	400	400	50	<0.005
4	415	400	50	<0.01
5	400	400	100	<0.005
6	400	400	150	<0.005
7	400	400	200	<0.005
8	400	400	250	<0.005

注) 25 $^{\circ}\text{C}$ 、トルエンに対する溶解度を示す。

10

【0129】

比較例 1

合成例 1 で得た Gaq3 5mg にトルエン (JIS 試薬一級) 100 mL を加え、3 分間激しく振とうしたところ、Gaq3 は完全にトルエンに溶解した。 20

【0130】

比較例 2

第 1 工程での昇華部の温度を 345 ± 5 に変更した以外は、実施例 1 と同様な操作を行った。得られた Gaq3 は、25 にて、トルエンに対する溶解度は 0.05 g/L より大であった。

【0131】

比較例 3

P. E. Burrows ら著, Appl. Phys. Lett., 64 巻, 2718 頁 (1994 年) に記載された方法によって Gaq3 を製造した。得られた Gaq3 は、25 にて、トルエンに対する溶解度は 0.05 g/L より大であった。 30

【0132】

実施例 9

合成例 1 で得た Gaq3 2g を、昇華装置の昇華部に仕込んだ。次いで、昇華装置内を真空ポンプで排気した後、純度 99.99% の窒素を吸気した。この排気と吸気を 3 回繰り返した。この時点での昇華装置内部の圧力は 760 Torr であった。次いで、昇華部の温度を 395 ± 5 にて 0.5 時間保持した後、50 になるまで放冷した。次いで、昇華装置内部の圧力を 0.1 Torr まで減圧し、昇華部温度を 350、析出部温度を 70 に設定し、昇華を行った。室温になるまで放冷した後、昇華装置内部の圧力を大気圧にし、析出部に付着した析出物を回収した。その後、25 の環境下で、回収物 5mg にトルエン (JIS 試薬一級) 100 mL を加え、3 分間激しく振とうしたところ、回収物は完全にトルエンに溶解しないことを確認した。 40

【0133】

実施例 10 ～ 実施例 12

以下の表 2 に示すように、第 1 工程での昇華部の温度を変更した以外は、実施例 9 と同様にして有機 EL 材料を製造した。得られた有機 EL 材料は、いずれも 25 にて、トルエンに対する溶解度が 0.05 g/L 以下であった。

【0134】

【表 2】

実施例	第 1 工程での昇華部の保持時間 (hr)	有機 E L 材料の溶解度 (g/L) 注)
9	0.2	< 0.01
10	1	< 0.005
11	3	< 0.001
12	5	< 0.001

注) 25℃、トルエンに対する溶解度を示す。

10

【0135】

(有機 EL 素子の特性)

以下の実施例では有機 E L 素子の特性評価結果を示す。有機 E L 素子の特性評価は、P. E. Burrowsら著、Appl. Phys. Lett., 64巻, 2718頁(1994年)に記載された方法を用いて、素子の電流 - 電圧 (I - V) 特性における駆動開始電圧 (Turn-on Voltage) により評価した。また正孔輸送材料には、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)1,1'-ビフェニル4,4'-ジアミン (TPD) を使用した。

【0136】

実施例 15

I T O 電極付きガラス板上に、TPDを蒸着して膜厚20nmの正孔輸送層を形成した後、実施例 1 で製造した有機 E L 材料を蒸着して膜厚40nmの電子注入性発光層を形成し、その上に、マグネシウムと銀を 10 : 1 の組成比 (重量比) を45nm共蒸着して電極を形成し、有機 E L 素子を作成した。この素子の電流 - 電圧特性を測定したところ駆動開始電圧は13.1 Vであった。

20

【0137】

実施例 16 ~ 実施例 26 および比較例 4 ~ 比較例 6

以下の表 3 に示すように、実施例 15 で使用した有機 E L 材料を変更した以外は、実施例 15 と同様にして有機 EL 素子を作製した。この素子の電流 - 電圧特性における駆動開始電圧を表 3 に示す。表 3 より明らかなように、本発明の有機 E L 材料を用いて作製した有機 E L 素子は、いずれも比較例 1 ~ 比較例 3 の有機 E L 材料を用いて作製した有機 E L 素子より 2 V 以上低い駆動開始電圧を示した。

30

【0138】

【表 3】

実施例および 比較例	使用した有機 EL材料	駆動開始電圧 (V)
実施例 1 5	実施例 1	13.1
実施例 1 6	実施例 2	13.1
実施例 1 7	実施例 3	12.5
実施例 1 8	実施例 4	12.9
実施例 1 9	実施例 5	12.4
実施例 2 0	実施例 6	12.3
実施例 2 1	実施例 7	12.3
実施例 2 2	実施例 8	12.4
実施例 2 3	実施例 9	12.9
実施例 2 4	実施例 1 0	12.2
実施例 2 5	実施例 1 1	12.1
実施例 2 6	実施例 1 2	12.1
比較例 3	比較例 1	15.5
比較例 4	比較例 2	15.2
比較例 5	比較例 3	15.5

10

20

【0139】

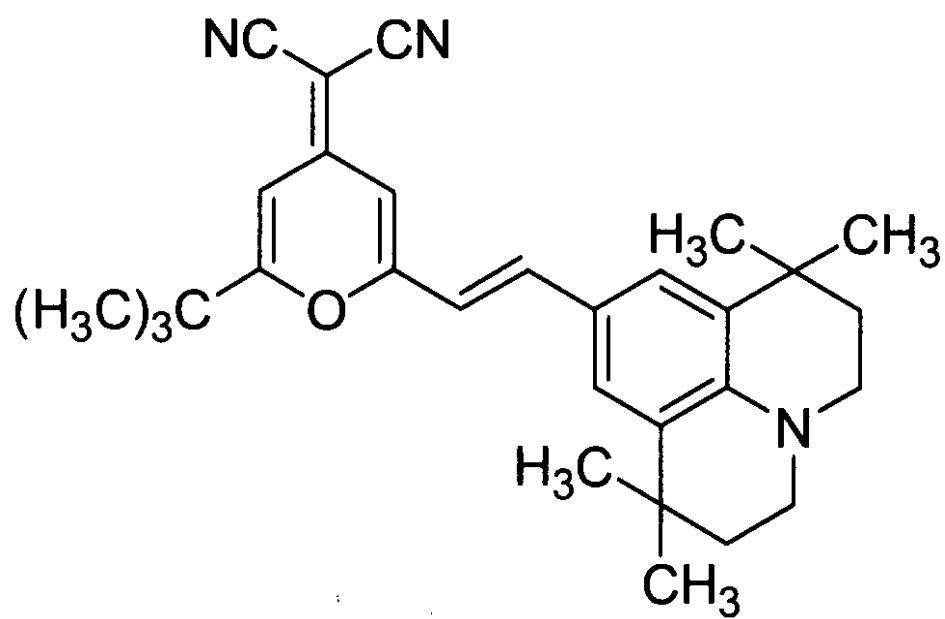
実施例 27

ITO電極付きガラス板上に、公知のN,N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-フェニル)-N,N'-ジフェニルベンジジンを蒸着して膜厚60nmの正孔注入層を形成した後、実施例1で製造した有機EL材料と下記に示す公知化合物であるDCJTとを20:1の組成比(重量比)で共蒸着して共蒸着して膜厚35nmの発光層を形成した。さらに、実施例1で製造した有機EL材料を蒸着して膜厚30nmの電子注入層を形成した。その上に、フッ化リチウム(LiF)を1nm、さらにアルミニウム(Al)を200nm蒸着によって電極を形成して有機EL素子を作成した。この素子は、直流電圧2.9Vでの発光効率は3.6(lm/W)を示した。また、発光輝度500(cd/m²)で定電流駆動したときの半減寿命は5000時間以上であった。

30

【0140】

【化 5 1】



10

D C J T B

フロントページの続き

(72)発明者 八木 弾生

東京都中央区京橋二丁目 3 番 1 3 号 東洋インキ製造株式会社内

F ターム(参考) 3K007 AB06 DB03 FA01

专利名称(译)	用于有机电致发光器件的材料		
公开(公告)号	JP2007063496A	公开(公告)日	2007-03-15
申请号	JP2005254463	申请日	2005-09-02
[标]申请(专利权)人(译)	东洋油墨制造株式会社		
申请(专利权)人(译)	东洋インキ制造株式会社		
[标]发明人	鳥羽泰正 田中洋明 須田康政 尾立嘉岳 八木弾生		
发明人	鳥羽 泰正 田中 洋明 須田 康政 尾立 嘉岳 八木 弾生		
IPC分类号	C09K11/06 H01L51/50		
FI分类号	C09K11/06.660 H05B33/14.B H05B33/22.B		
F-TERM分类号	3K007/AB06 3K007/DB03 3K007/FA01 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/BB03 3K107/BB04 3K107/BB06 3K107/CC12 3K107/CC45 3K107/DD59 3K107/DD64 3K107/FF00		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

特别需要能够以较低的驱动开始电压驱动的有机EL元件和能够实现该有机EL的材料。 尽管已知Gaq3是具有比其类似物Alq3更低的驱动开始电压的材料，但是本发明提供了更低的驱动开始电压，并且Gaq3可以在工业规模上稳定且廉价地制造。 提供。 解决方案：由三（8-氧基喹啉基）镓组成的有机电致发光材料在常压于25℃时在甲苯中的溶解度为0.05 g / L或更低。 作为原料，在氮气或氩气中于360℃或更高且低于420℃的温度下，在25℃的大气压下于甲苯中具有大于0.5 g / L的溶解度的三（8-氧喹啉基）镓。 如上所述的有机电致发光材料的制造方法，其包括将温度保持5分钟以上的第一步骤和将其升华的第二步骤。 [选择图]无

		特開2007-063496A (P2007063496A)	
		(43) 公開日 平成19年3月15日(2007.3.15)	
(51) Int. Cl.		F I	テーマコード (FI)
C09K 11/06 (2006.01)		C09K 11/06 660	3K007
H01L 51/50 (2006.01)		H05B 33/14 B	
		H05B 33/22 B	
		審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (6)	
(21) 出願番号	特願2005-254463 (P2005-254463)	(71) 出願人	000222118 東洋インキ製造株式会社
(22) 出願日	平成17年9月2日 (2005.9.2)		東京都中央区京橋2丁目3番13
		(72) 発明者	鳥羽 泰正 東京都中央区京橋二丁目3番13 インキ製造株式会社内
		(72) 発明者	田中 洋明 東京都中央区京橋二丁目3番13 インキ製造株式会社内
		(72) 発明者	須田 康政 東京都中央区京橋二丁目3番13 インキ製造株式会社内
		(72) 発明者	尾立 嘉岳 東京都中央区京橋二丁目3番13