

(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2020-72194

(P2020-72194A)

(43) 公開日 令和2年5月7日(2020.5.7)

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)
H 0 1 L 51/50	(2006.01)	H 0 5 B 33/14	B	3 K 1 0 7
C 0 9 K 11/06	(2006.01)	C 0 9 K 11/06	6 6 0	

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 39 頁)

(21) 出願番号	特願2018-205722 (P2018-205722)	(71) 出願人	000001270
(22) 出願日	平成30年10月31日 (2018.10.31)		コニカミノルタ株式会社
			東京都千代田区丸の内二丁目7番2号
		(74) 代理人	110001254
			特許業務法人光陽国際特許事務所
		(72) 発明者	田中 達夫
			東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内
		(72) 発明者	片倉 利恵
			東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内
		(72) 発明者	北 弘志
			東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内
		最終頁に続く	

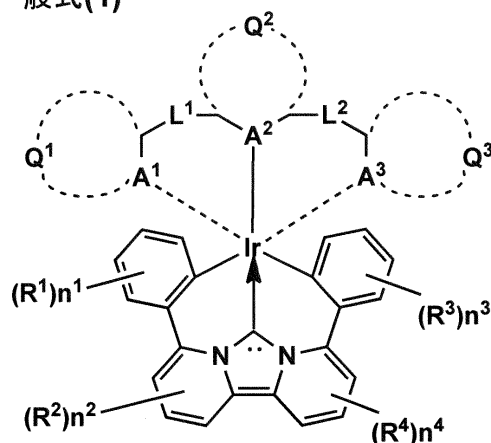
(54) 【発明の名称】 非イオン性有機エレクトロニクス材料、電子デバイス、有機エレクトロルミネッセンス素子及び有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】従来のIr-カルベン錯体と同程度の深青色の発光を示し、かつ、錯体全体の安定性の向上を図ることができる新規な構造を有する非イオン性有機エレクトロニクス材料を提供する。

【解決手段】下記一般式(1)で表される非イオン性有機エレクトロニクス材料。

一般式(1)



10

【選択図】 なし

20

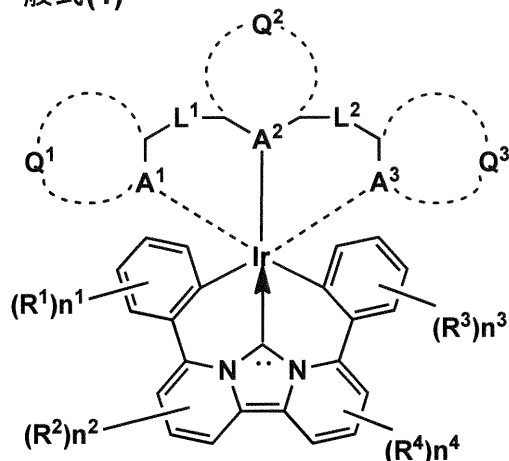
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式(1)で表される構造を有することを特徴とする非イオン性有機エレクトロニクス材料。

【化 1】

一般式(1)



10

[式中、 $R^1 \sim R^4$ は、各々独立にアルキル基、アリール基、複素環基、シアノ基又はフッ素原子を表す。 $n^1 \sim n^4$ は、0～4の整数を表し、 $n^1 \sim n^4$ が2以上の場合には、同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、置換基同士が互いに結合してもよい。 L^1 、 L^2 は、単結合又は連結基を表す。 $Q^1 \sim Q^3$ は、各々独立に置換若しくは非置換の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表す。 $A^1 \sim A^3$ は、各々独立に炭素原子又は窒素原子を表し、 $A^1 \sim A^3$ の少なくとも一つは炭素原子を表す。]

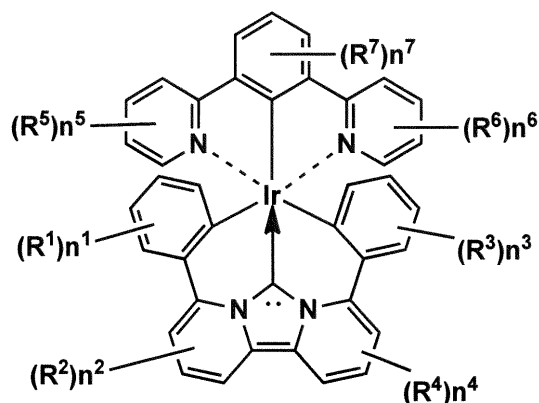
20

【請求項 2】

前記一般式(1)で表される構造が、下記一般式(2)で表される構造であることを特徴とする請求項1に記載の非イオン性有機エレクトロニクス材料。

【化 2】

一般式(2)



30

40

[式中、 $R^1 \sim R^7$ は、各々独立にアルキル基、アリール基、複素環基、シアノ基又はフッ素原子を表す。 $n^1 \sim n^6$ は、0～4の整数を表し、 n^7 は、0～3の整数を表し、 $n^1 \sim n^7$ が2以上の場合には、同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、置換基同士が互いに結合してもよい。]

【請求項 3】

請求項1又は請求項2に記載の非イオン性有機エレクトロニクス材料を含有することを特徴とする電子デバイス。

【請求項 4】

50

請求項 1 又は請求項 2 に記載の非イオン性有機エレクトロニク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。

【請求項 5】

請求項 1 又は請求項 2 に記載の非イオン性有機エレクトロニク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作製用溶液。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、非イオン性有機エレクトロニクス材料、電子デバイス、有機エレクトロルミネッセンス素子及び有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液に関し、特に、従来の Ir - カルベン錯体と同程度の深青色の発光を示し、かつ、錯体全体の安定性の向上を図ることができる新規な構造を有する非イオン性有機エレクトロニクス材料等に関する。

10

【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」又は「OLED」ともいう。）は、発光する化合物を含有する発光層を、陰極と陽極とで挟んだ構成を有する。これに、電界を印加することにより、陽極から注入された正孔と陰極から注入された電子を発光層内で再結合させることで励起子（エキシトン）を生成させる。このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・リン光）を利用した発光素子である。

20

また、有機 EL 素子は、電子ディスプレイや照明用平面光源としてすでに商品化されており、特に省エネルギーの観点から注目され期待されている。

しかしながら、実際には、緑と赤の発光は発光量子収率がほぼ 100% のリン光方式が適用されているものの、青においては、リン光で十分な発光素子寿命が達成し得ないことから一部の照明用に実用されるに留まり、それ以外は全て蛍光方式が採用されている。

リン光発光を司るのは、イリジウム（Ir）やプラチナ（Pt）などの非イオン性遷移金属錯体であるが、青色発光は波長の観点から他の発光色よりも HOMO - LUMO 準位のギャップを大きくする必要があり、とりわけ錯体の安定性が発光素子寿命に直結することになる。

30

【0003】

この問題を解決するために、配位力の強いカルベン配位子を用いた Ir 錯体が検討されており、特許文献 1 に開示されている Ir - カルベン錯体は、発光色を青色にするためにシアノ基を導入して HOMO - LUMO 準位ギャップを適切に調整している。しかしながら、実際にはこの錯体ではまだ安定性が足らず、照明用としてもディスプレイ用としても実用には至っていない。

【0004】

一方、非特許文献 1 では、3 座配位子骨格のカルベン金属錯体の合成に成功しているが、リン光発光の用途とは異なる。

【先行技術文献】

【特許文献】

40

【0005】

【特許文献 1】国際公開第 2007 / 088093 号

【非特許文献】

【0006】

【非特許文献 1】Zeitschrift fuer anorganische und allgemeine Chemie, vol; 641, issue: 12 - 13, pages: 2199 - 2203

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

50

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、従来のIr-カルベン錯体と同程度の深青色の発光を示し、かつ、錯体全体の安定性の向上を図ることができる新規な構造を有する非イオン性有機エレクトロニクス材料を提供することである。また、当該非イオン性有機エレクトロニクス材料を用いた電子デバイス、有機エレクトロルミネッセンス素子及び有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0008】

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する過程において、まず、前記特許文献1に開示されているようなIr-カルベン錯体を安定化させるためには、通常、1価2座配位子を3つ要するIr錯体に対し、配位子の数を減らすことで、エントロピー効果を発揮させることが最善の策であると推測した。キレート錯体が、単座配位錯体よりも安定であることは一般的であり、また、同じキレート錯体でも配位子の数を少なくできれば、その熱安定性が飛躍的に向上すると考えられる。ただし、3価6配位が安定なIr錯体において、2つの配位子でそれを成し遂げることは容易ではなく、いまだかつて、そのようなIr錯体が合成された例は報告されていない。

一方、前記非特許文献1では、リン光発光の用途とは別に、3座配位子骨格のカルベン金属錯体の合成に成功しており、本発明者は、当該配位子を用いることにより、非対称型の3座配位子2つで非イオン性Ir錯体を合成できる可能性を見いだした。そして、従来のIr-カルベン錯体と比較して、配位子の数を少なくする、すなわち、2種類の3座配位子で構成されたIr錯体とすることで、深青色を発光し、かつ、安定性に優れた有機エレクトロニクス材料を提供することができることを見いだし本発明に至った。

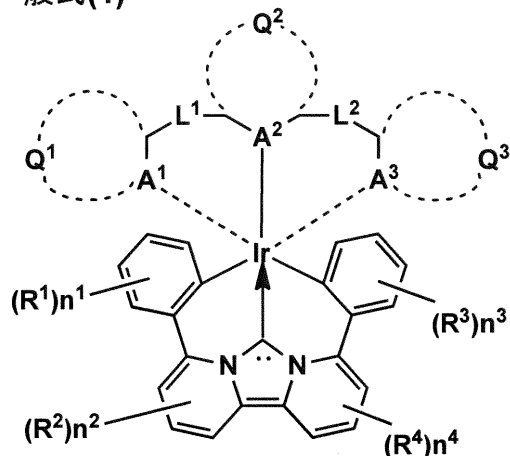
すなわち、本発明に係る上記課題は、以下の手段により解決される。

【0009】

1. 下記一般式(1)で表される構造を有することを特徴とする非イオン性有機エレクトロニクス材料。

【化1】

一般式(1)



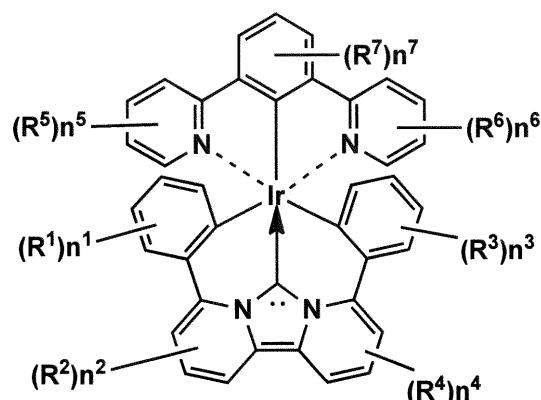
[式中、 $R^1 \sim R^4$ は、各々独立にアルキル基、アリール基、複素環基、シアノ基又はフッ素原子を表す。 $n^1 \sim n^4$ は、0～4の整数を表し、 $n^1 \sim n^4$ が2以上の場合には、同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、置換基同士が互いに結合してもよい。 L^1 、 L^2 は、単結合又は連結基を表す。 $Q^1 \sim Q^3$ は、各々独立に置換若しくは非置換の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表す。 $A^1 \sim A^3$ は、各々独立に炭素原子又は窒素原子を表し、 $A^1 \sim A^3$ の少なくとも一つは炭素原子を表す。]

【0010】

2. 前記一般式(1)で表される構造が、下記一般式(2)で表される構造であることを特徴とする第1項に記載の非イオン性有機エレクトロニクス材料。

【化 2】

一般式(2)



10

[式中、 $R^1 \sim R^7$ は、各々独立にアルキル基、アリール基、複素環基、シアノ基又はフッ素原子を表す。 $n^1 \sim n^6$ は、0 ~ 4 の整数を表し、 n^7 は、0 ~ 3 の整数を表し、 $n^1 \sim n^7$ が 2 以上の場合には、同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、置換基同士が互いに結合してもよい。]

【0011】

3. 第1項又は第2項に記載の非イオン性有機エレクトロニクス材料を含有することを特徴とする電子デバイス。

20

【0012】

4. 第1項又は第2項に記載の非イオン性有機エレクトロニク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。

【0013】

5. 第1項又は第2項に記載の非イオン性有機エレクトロニク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作製用溶液。

【発明の効果】

【0014】

本発明の上記手段により、従来の Ir - カルベン錯体と同程度の深青色の発光を示し、かつ、錯体全体の安定性の向上を図ることができる新規な構造を有する非イオン性有機エレクトロニクス材料を提供することができ、また、当該非イオン性有機エレクトロニクス材料を用いた電子デバイス、有機エレクトロルミネッセンス素子及び有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液を提供することができる。

30

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

3価6配位が安定な Ir 錯体において、前記一般式(1)で表される構造のように、2種類の3座配位子で構成された Ir 錯体とすることで、深青色を発光し、かつ、安定性に優れた有機エレクトロニクス材料を提供することができる。

熱力学的観点から、錯体形成反応を考えると、単座配位子が6つ配位したイリジウム錯体を多座(例えば3座)配位子に変換する反応においては、系全体の分子自由度が増加する、すなわち、エントロピーが増加するためギブスの自由エネルギーが低下し、より安定な錯体が得られると考えられる。

40

換言すると、上記変換反応においては、多座配位子とイリジウムイオンで環状構造を形成した、すなわち、キレート錯体を形成したことによる「キレート効果」が寄与するものと考えられる。

本発明に係るイリジウム錯体についても、上記機構と同様の機構によるものと推察される。

【図面の簡単な説明】

【0015】

【図1】照明装置の概略図

50

【図 2】照明装置の模式図

【発明を実施するための形態】

【0016】

本発明の非イオン性有機エレクトロニクス材料は、前記一般式(1)で表される構造を有することを特徴とする。

この特徴は、下記各実施形態に共通又は対応する技術的特徴である。

【0017】

本発明の実施態様としては、前記一般式(1)で表される構造が、下記一般式(2)で表される構造であることが、錯体形成後の立体的な安定性の点で好ましい。

【0018】

本発明の有機エレクトロニクス材料は、電子デバイス、特に有機エレクトロルミネッセンス素子に好適に用いられる。

また、本発明の有機エレクトロニクス材料は、有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液に好適に用いられる。

【0019】

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。

【0020】

[本発明の非イオン性有機エレクトロニクス材料の概要]

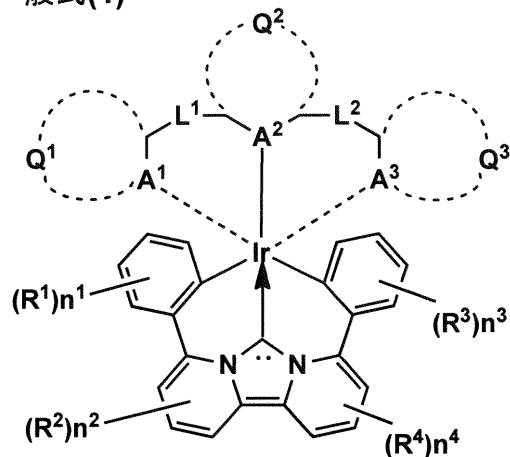
本発明の非イオン性有機エレクトロニクス材料(以下、単に「有機エレクトロニクス材料」ともいう。)は、下記一般式(1)で表される構造を有することを特徴とする。

【0021】

<一般式(1)で表される構造を有する化合物>

【化 3】

一般式(1)



[式中、 $R^1 \sim R^4$ は、各々独立にアルキル基、アリール基、複素環基、シアノ基又はフッ素原子を表す。 $n^1 \sim n^4$ は、0～4の整数を表し、 $n^1 \sim n^4$ が2以上の場合には、同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、置換基同士が互いに結合してもよい。 L^1 、 L^2 は、単結合又は連結基を表す。 $Q^1 \sim Q^3$ は、各々独立に置換若しくは非置換の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表す。 $A^1 \sim A^3$ は、各々独立に炭素原子又は窒素原子を表し、 $A^1 \sim A^3$ の少なくとも一つは炭素原子を表す。]

【0022】

一般式(1)において、 $R^1 \sim R^4$ は、各々独立にアルキル基、アリール基、複素環基、シアノ基又はフッ素原子を表す。

前記アルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、(t)ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、

テトラデシル基、ペンタデシル基、ベンジル基等が挙げられる。

前記アリール基（芳香族炭化水素基ともいう。）としては、例えば、フェニル基、p - クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ピフェニル基等が挙げられる。

前記複素環基としては、例えば、エポキシ環、アジリジン環、チイラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキサラン環、ピロリジン環、ピラゾリジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、 β -カプロラク톤環、 β -カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1, 3 - ジオキサン環、1, 4 - ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン 1, 1 - ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ[2, 2, 2] - オクタン環等が挙げられる。

【0023】

一般式(1)において、 $n^1 \sim n^4$ は、0 ~ 4 の整数を表す。 $n^1 \sim n^4$ が 2 以上の場合には、同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、置換基同士が互いに結合してもよい。

【0024】

一般式(1)において、 L^1 、 L^2 は、単結合又は連結基を表す。

前記連結基としては、2 価の連結基が挙げられ、2 価の連結基としては、特に制限はないが、アルキレン基、アルケニレン基、アルキニレン基、O、(C=O)、NR、S、(O=S=O) からなる群より選ばれる 2 価の連結基や、それらを 2 個組み合わせた連結基等が挙げられる。

一般式(1)において、 $Q^1 \sim Q^3$ は、各々独立に置換若しくは非置換の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表す。

前記芳香族炭化水素環としては、前記 $R^1 \sim R^4$ で表されるアリール基（芳香族炭化水素基）と同様のものが挙げられる。

前記芳香族複素環としては、ピリジン環、ピリミジン環、フラン環、ピロール環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラゾール環、ピラジン環、トリアゾール環（例えば、1, 2, 4 - トリアゾール、1, 2, 3 - トリアゾール等）、オキサゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、イソオキサゾール環、イソチアゾール環、オキサジアゾール環、チオフェン環、キノリン環、ベンゾフラン環、ジベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、ジベンゾチオフェン環、インドール環、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環（前記カルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す。）、キノキサリン環、ピリダジン環、トリアジン環、キナゾリン環、フタラジン環等が挙げられる。

また、前記芳香族炭化水素環又は芳香族複素環が有してもよい置換基としては、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、複素環基、芳香族複素環基、ハロゲン原子、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、ウレイド基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アミノ基、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、アルキルシリル基、アリールシリル基、アルキルホスフィノ基、アリールホスフィノ基、アルキルホスホリル基、アリールホスホリル基、アルキルチオホスホリル基及びアリールチオホスホリル基等が挙げられる。

【0025】

前記一般式(1)において、 $A^1 \sim A^3$ は、各々独立に炭素原子又は窒素原子を表し、 $A^1 \sim A^3$ の少なくとも一つは炭素原子を表す。

【0026】

10

20

30

40

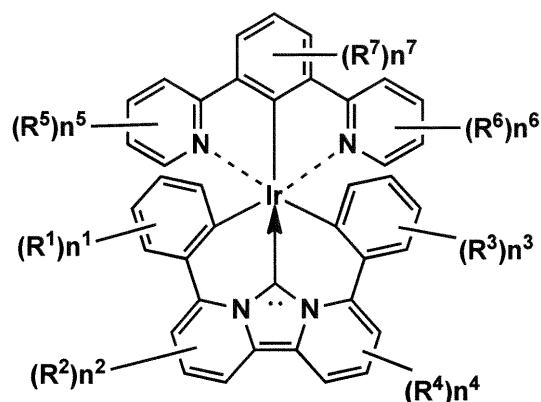
50

< 一般式 (2) で表される構造を有する化合物 >

前記一般式 (1) で表される構造が、下記一般式 (2) で表される構造であることが、錯体形成後の立体的な安定性の点で好ましい。

【化 4】

一般式(2)



10

[式中、 $R^1 \sim R^7$ は、各々独立にアルキル基、アリール基、複素環基、シアノ基又はフッ素原子を表す。 $n^1 \sim n^6$ は、0 ~ 4 の整数を表し、 n^7 は、0 ~ 3 の整数を表し、 $n^1 \sim n^7$ が 2 以上の場合には、同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、置換基同士が互いに結合してもよい。]

20

【0027】

一般式 (2) において、 $R^1 \sim R^7$ は、各々独立にアルキル基、アリール基、複素環基、シアノ基又はフッ素原子を表す。

前記アルキル基、アリール基、複素環基としては、前記一般式 (1) の $R^1 \sim R^4$ で表されるアルキル基、アリール基、複素環基と同様のものが挙げられる。

【0028】

< 例示化合物 >

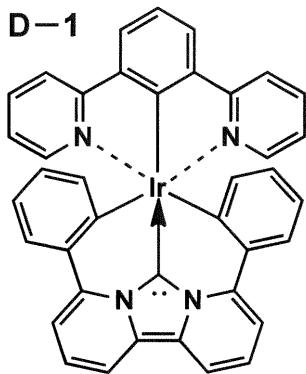
以下、本発明に係る一般式 (1) 及び一般式 (2) で表される構造を有する化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。

【0029】

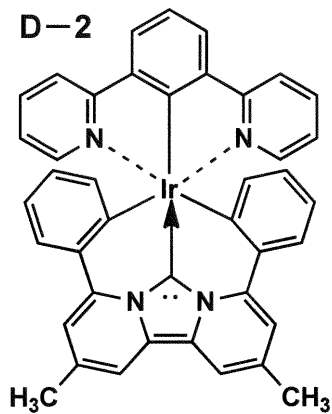
30

【化 5】

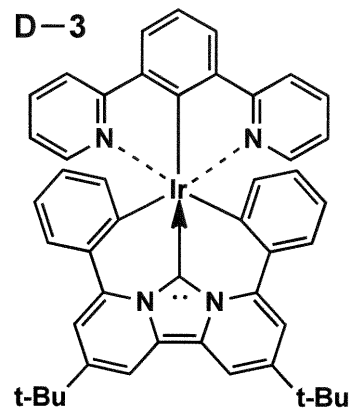
D-1



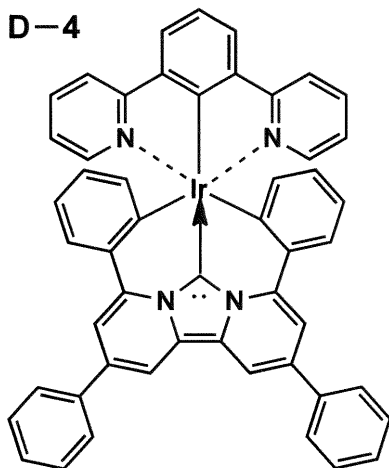
D-2



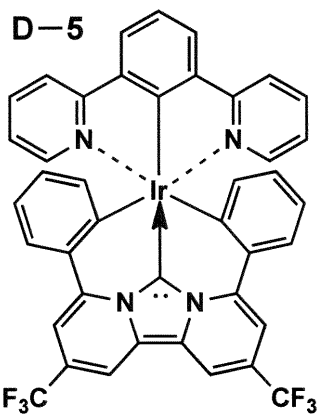
D-3



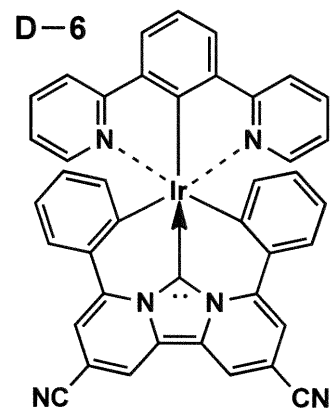
D-4



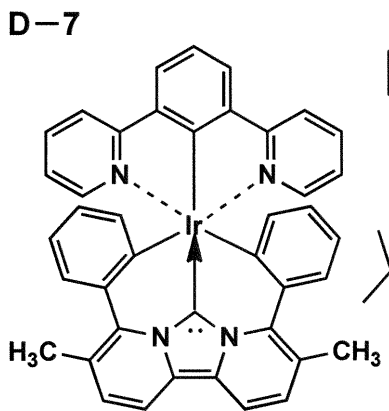
D-5



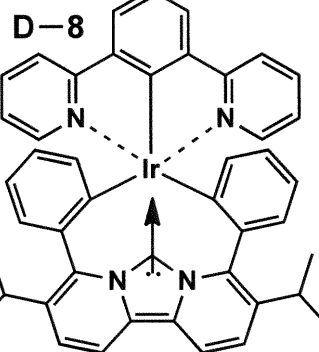
D-6



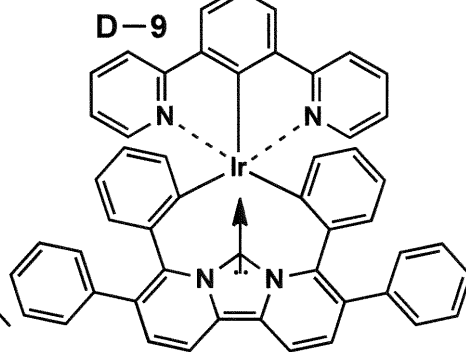
D-7



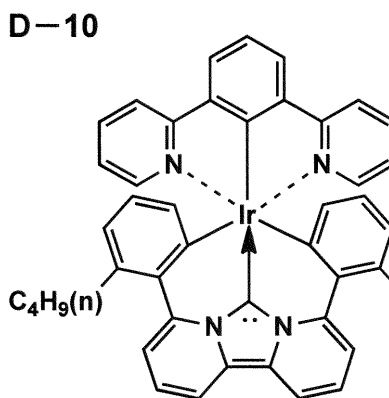
D-8



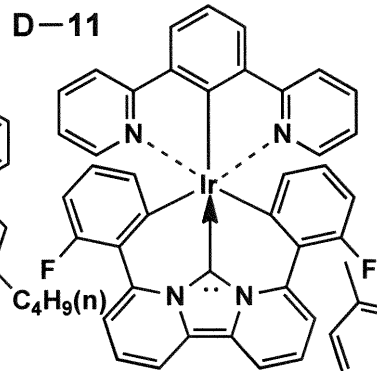
D-9



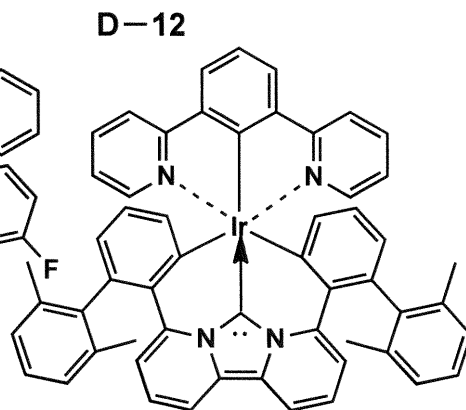
D-10



D-11



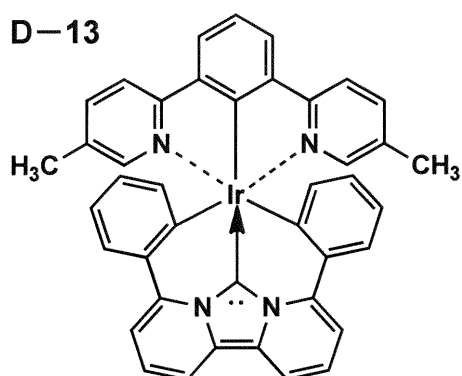
D-12



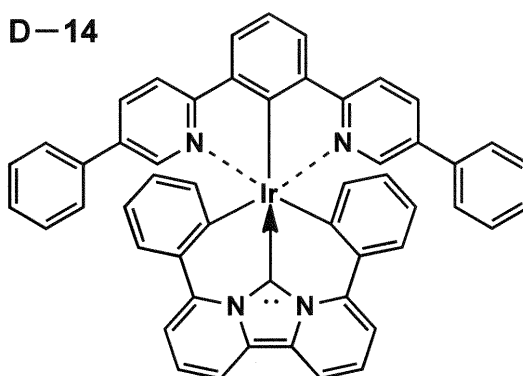
【 0 0 3 0 】

【化 6】

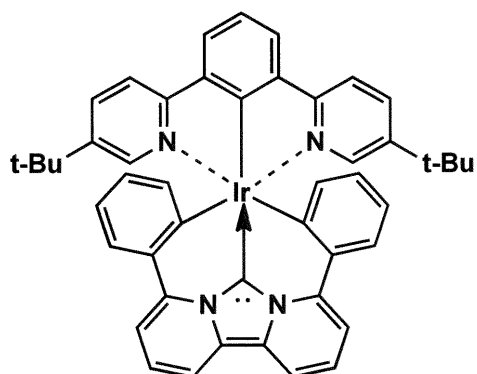
D-13



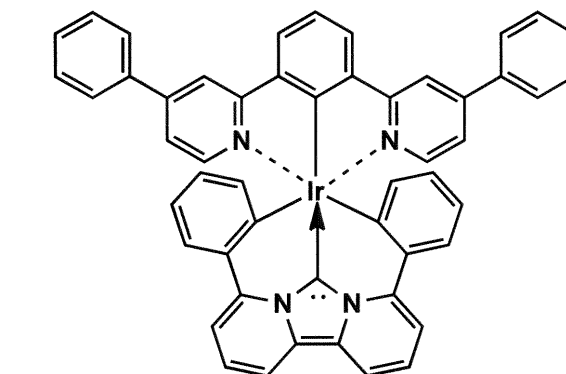
D-14



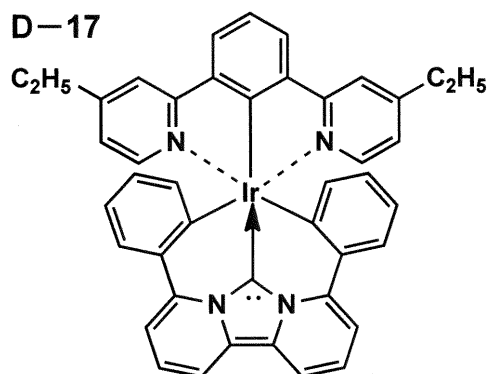
D-15



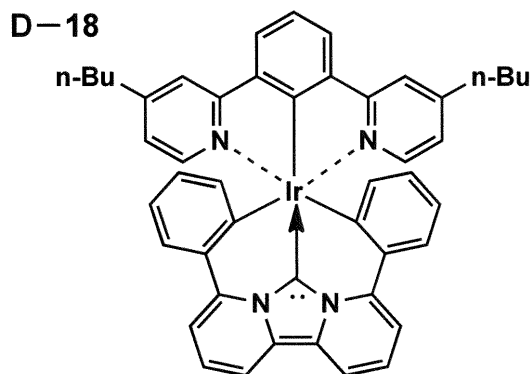
D-16



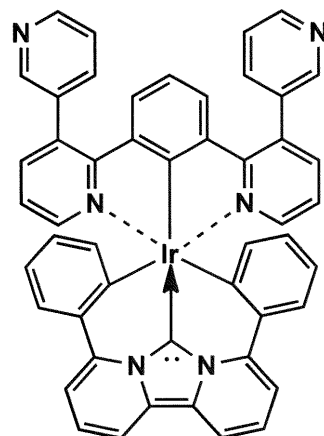
D-17



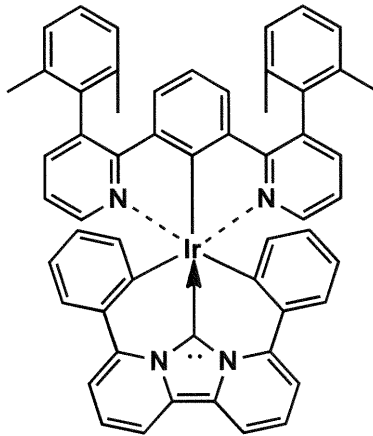
D-18



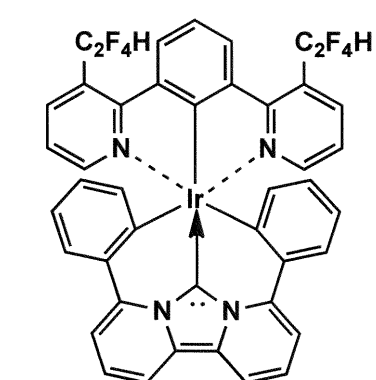
D-19



D-20



D-21



【 0 0 3 1 】

10

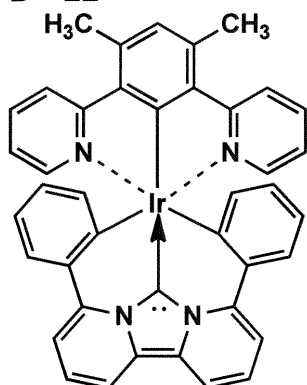
20

30

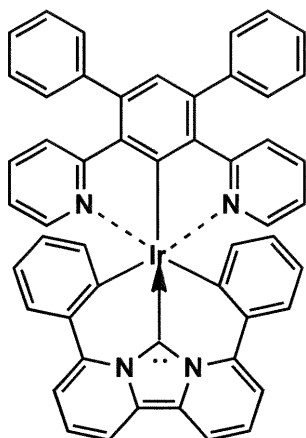
40

【化 7】

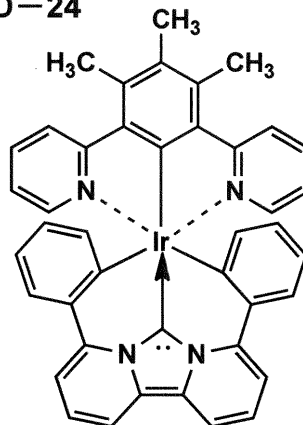
D-22



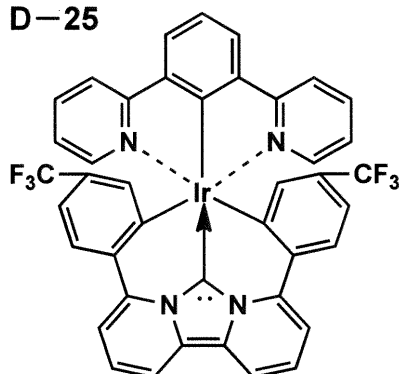
D-23



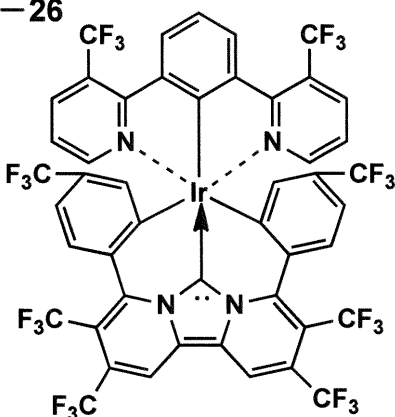
D-24



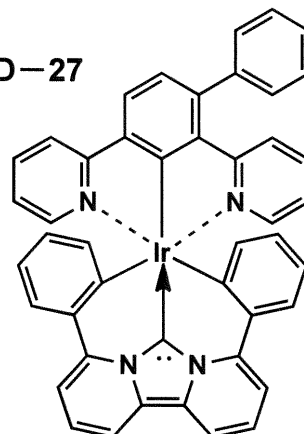
D-25



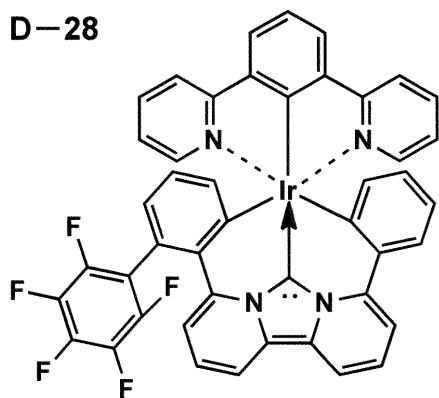
D-26



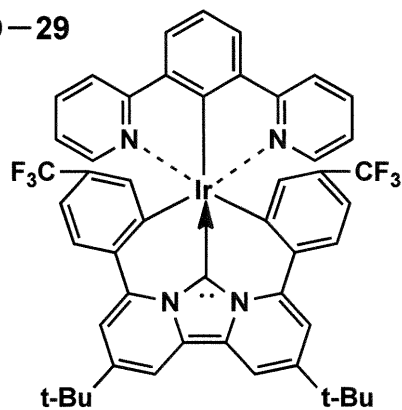
D-27



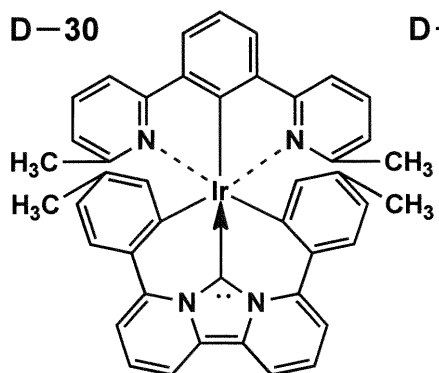
D-28



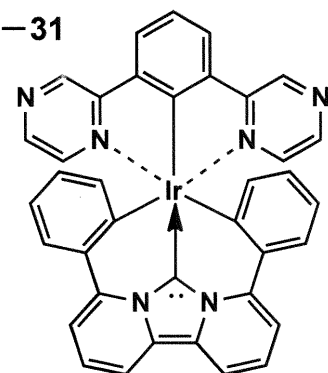
D-29



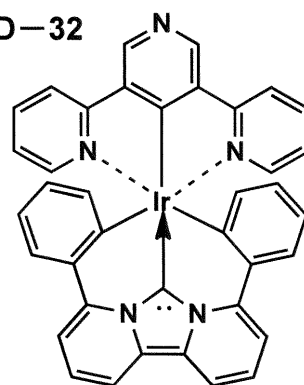
D-30



D-31



D-32



【 0 0 3 2 】

10

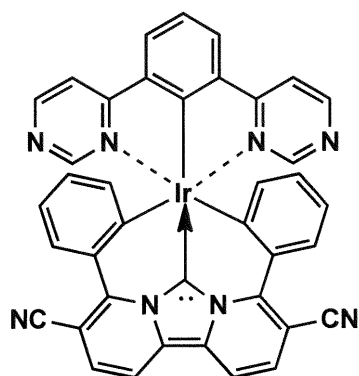
20

30

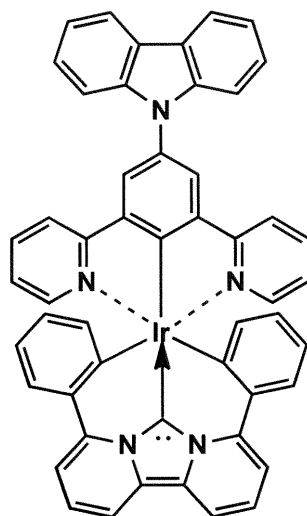
40

【化 8】

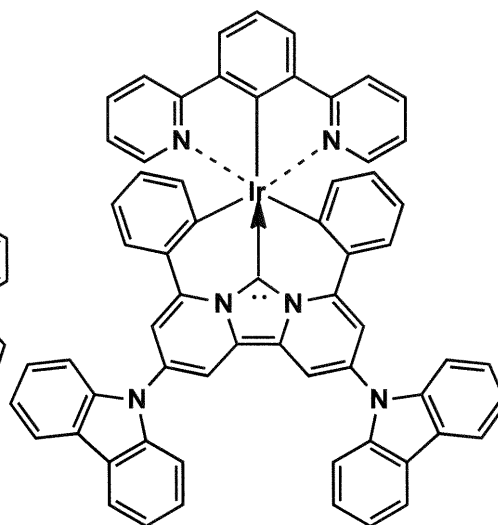
D-33



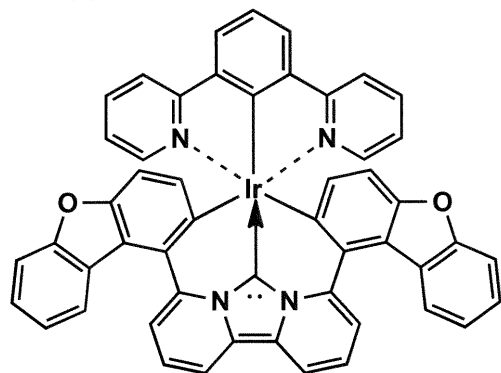
D-34



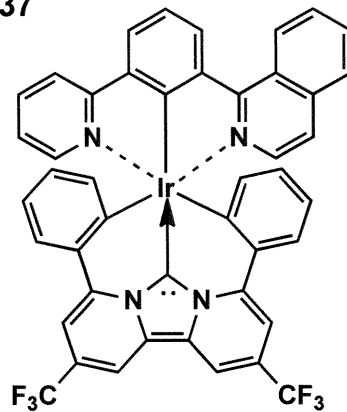
D-35



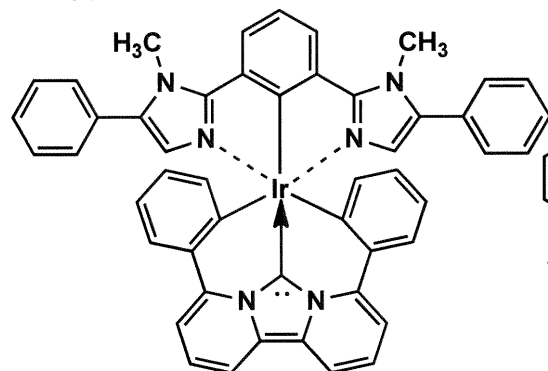
D-36



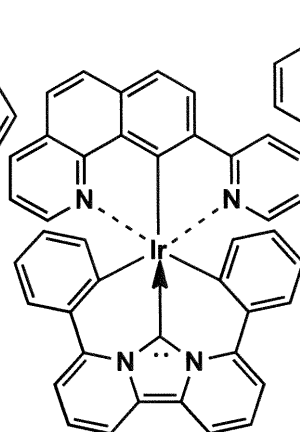
D-37



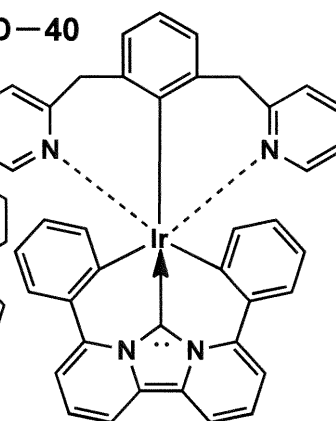
D-38



D-39



D-40



【 0 0 3 3 】

< 合成方法 >

前記一般式(1)で表される構造を有する化合物の合成方法は、前記非特許文献1に記載の金錯体の合成方法と同様の方法によって合成することができる。具体的には、以下のスキームにしたがって合成することができる。

10

20

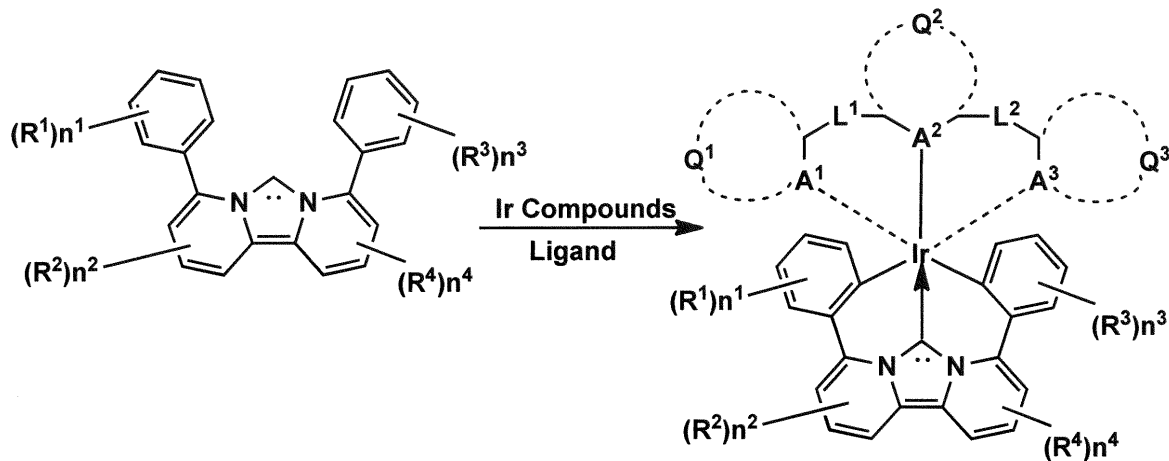
30

40

50

【 0 0 3 4 】

【 化 9 】



10

【 0 0 3 5 】

[電子デバイス]

本発明の有機エレクトロニクス材料は、例えば、有機エレクトロルミネッセンス材料、有機半導体材料、有機太陽電池材料、光電変換材料などとして、電子デバイスに好適に用いられる。すなわち、本発明の電子デバイスは、前記有機エレクトロニクス材料を含有する

20

ことを特徴とする。
電子デバイスとしては、例えば、有機電界発光素子、LED (Light Emitting Diode)、液晶素子、太陽電池、タッチパネル等が挙げられる。

【 0 0 3 6 】

[有機EL素子]

本発明の有機EL素子は、前記有機エレクトロニクス材料を含有することを特徴とする。

本発明の有機エレクトロニクス材料を用いて製造される有機EL素子における代表的な素子構成としては、以下の構成を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

30

- (i) 陽極 / 発光層 / 陰極
- (ii) 陽極 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極
- (iii) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 陰極
- (iv) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極
- (v) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極
- (vi) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極
- (vii) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / (電子阻止層 /) 発光層 / (正孔阻止層 /) 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

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

【 0 0 3 7 】

40

本発明に係る発光層は、単層又は複数層で構成されており、発光層が複数の場合は各発光層の間に非発光性の中間層を設けてもよい。必要に応じて、発光層と陰極との間に正孔阻止層 (正孔障壁層ともいう) や電子注入層 (陰極バッファ層ともいう) を設けてもよく、また、発光層と陽極との間に電子阻止層 (電子障壁層ともいう) や正孔注入層 (陽極バッファ層ともいう) を設けてもよい。

本発明に係る電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する層であり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。また、複数層で構成されていてもよい。

本発明に係る正孔輸送層とは、正孔を輸送する機能を有する層であり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。また、複数層で構成されていてもよい。

上記の代表的な素子構成において、陽極と陰極を除いた層を「有機層」ともいう。

50

【0038】

(タンデム構造)

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

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

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

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

ここで、上記第1発光ユニット、第2発光ユニット及び第3発光ユニットは全て同じであっても、異なってもよい。また二つの発光ユニットが同じであり、残る一つが異なってもよい。

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

【0039】

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

【0040】

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

【0041】

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

【0042】

タンデム型有機EL素子の具体例としては、例えば、米国特許第6337492号、米国特許第7420203号、米国特許第7473923号、米国特許第6872472号、米国特許第6107734号、米国特許第6337492号、国際公開第2005/009087号、特開2006-228712号、特開2006-24791号、特開2006-49393号、特開2006-49394号、特開2006-49396号、特開2011-96679号、特開2005-340187号、特許第4711424号、特許第3496681号、特許第3884564号、特許第4213169号、特開2010-192719号、特開2009-076929号、特開2008-078414号、特開2007-059848号、特開2003-272860号、特開2003-045676号、国際公開第2005/094130号等に記載の素子構成や構成材料等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

【0043】

以下、本発明の有機EL素子を構成する各層について説明する。

《発光層》

本発明に係る発光層は、電極又は隣接層から注入されてくる電子及び正孔が再結合し、励起子を経由して発光する場を提供する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても、発光層と隣接層との界面であってもよい。本発明に係る発光層は、本発明で規定する

要件を満たしていれば、その構成に特に制限はない。

発光層の厚さの総和は、特に制限はないが、形成する層の均質性や、発光時に不必要な高電圧を印加するのを防止し、かつ、駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、 $2\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{ m}$ の範囲内に調整することが好ましく、より好ましくは $2 \sim 500\text{ nm}$ の範囲内に調整され、さらに好ましくは $5 \sim 200\text{ nm}$ の範囲内に調整される。

また、個々の発光層の厚さとしては、 $2\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$ の範囲内に調整することが好ましく、より好ましくは $2 \sim 200\text{ nm}$ の範囲内に調整され、さらに好ましくは $3 \sim 150\text{ nm}$ の範囲内に調整される。

【0044】

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

【0045】

（1）発光ドーパント

発光ドーパントとしては、蛍光発光性ドーパント（蛍光ドーパント、蛍光性化合物ともいう）と、リン光発光性ドーパント（リン光ドーパント、リン光性化合物ともいう）が好ましく用いられる。本発明においては、少なくとも1層の発光層が、前記有機エレクトロニクス材料（前記一般式（1）で表される構造を有する化合物）を含有する。

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

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

【0046】

本発明に係る有機EL素子の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩学会編、東京大学出版会、1985）の108頁の図4.16において、分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタ（株）製）で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

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

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

本発明に係る有機EL素子における白色とは、特に限定はなく、橙色寄りの白色であっても青色寄りの白色であってもよいが、2度視野角正面輝度を前述の方法により測定した際に、 1000 cd/m^2 でのCIE1931表色系における色度が $x = 0.39 \pm 0.09$ 、 $y = 0.38 \pm 0.08$ の領域内にあることが好ましい。

【0047】

（1.1）リン光発光性ドーパント

本発明に係るリン光発光性ドーパント（以下、「リン光ドーパント」ともいう。）について説明する。

本発明に係るリン光ドーパントは、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、具体的には、室温（25）にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、25において0.01以上の化合物であると定義されるが、好ましいリン光量子収率は0.1以上である。

【0048】

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

10

20

30

40

50

リン光ドーパントの発光は原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光ドーパントに移動させることでリン光ドーパントからの発光を得るというエネルギー移動型である。もう一つはリン光ドーパントがキャリアトラップとなり、リン光ドーパント上でキャリアの再結合が起こりリン光ドーパントからの発光が得られるというキャリアトラップ型である。いずれの場合においても、リン光ドーパントの励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

【0049】

本発明において使用できるリン光ドーパントとしては、前記有機エレクトロニクス材料（前記一般式（1）で表される構造を有する化合物）を用いることができる。

また、前記有機エレクトロニクス材料に加えて、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して併用してもよい。

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

Nature 395, 151 (1998)、Appl. Phys. Lett. 78, 1622 (2001)、Adv. Mater. 19, 739 (2007)、Chem. Mater. 17, 3532 (2005)、Adv. Mater. 17, 1059 (2005)、国際公開第2009/100991号、国際公開第2008/101842号、国際公開第2003/040257号、米国特許公開第2006/835469号、米国特許公開第2006/0202194号、米国特許公開第2007/0087321号、米国特許公開第2005/0244673号、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、米国特許第7332232号、米国特許公開第2009/0108737号、米国特許公開第2009/0039776号、米国特許第6921915号、米国特許第6687266号、米国特許公開第2007/0190359号、米国特許公開第2006/0008670号、米国特許公開第2009/0165846号、米国特許公開第2008/0015355号、米国特許第7250226号、米国特許第7396598号、米国特許公開第2006/0263635号、米国特許公開第2003/0138657号、米国特許公開第2003/0152802号、米国特許第7090928号、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2007/004380号、国際公開第2006/082742号、米国特許公開第2006/0251923号、米国特許公開第2005/0260441号、米国特許第7393599号、米国特許第7534505号、米国特許第7445855号、米国特許公開第2007/0190359号、米国特許公開第2008/0297033号、米国特許第7338722号、米国特許公開第2002/0134984号、米国特許第7279704号、米国特許公開第2006/098120号、米国特許公開第2006/103874号、国際公開第2005/076380号、国際公開第2010/032663号、国際公開第2008/140115号、国際公開第2007/052431号、国際公開第2011/134013号、国際公開第20

10

20

30

40

50

11 / 157339号、国際公開第2010 / 086089号、国際公開第2009 / 113646号、国際公開第2012 / 020327号、国際公開第2011 / 051404号、国際公開第2011 / 004639号、国際公開第2011 / 073149号、米国特許公開第2012 / 228583号、米国特許公開第2012 / 212126号、特開2012 - 069737号公報、特開2012 - 195554号公報、特開2009 - 114086号公報、特開2003 - 81988号公報、特開2002 - 302671号公報、特開2002 - 363552号公報等である。

【0050】

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

10

【0051】

(1.2) 蛍光発光性ドーパント

本発明に係る蛍光発光性ドーパント(以下、「蛍光ドーパント」ともいう)について説明する。

本発明に係る蛍光ドーパントは、励起一重項からの発光が可能な化合物であり、励起一重項からの発光が観測される限り特に限定されない。

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

20

【0052】

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

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

30

【0053】

(2) ホスト化合物

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

好ましくは室温(25)においてリン光発光のリン光量子収率が、0.1未満の化合物であり、さらに好ましくはリン光量子収率が0.01未満の化合物である。また、発光層に含有される化合物の中で、その層中での質量比が20%以上であることが好ましい。

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

40

【0054】

ホスト化合物は、単独で用いてもよく、又は複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。

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

【0055】

公知のホスト化合物としては、正孔輸送能又は電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、さらに、有機EL素子を高温駆動時や素子駆動中の発熱に対して安定して

50

動作させる観点から、高いガラス転移温度 (T_g) を有することが好ましい。好ましくは T_g が 90 以上であり、より好ましくは 120 以上である。

ここで、ガラス転移点 (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。

【0056】

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

特開 2001-257076 号公報、同 2002-308855 号公報、同 2001-313179 号公報、同 2002-319491 号公報、同 2001-357977 号公報、同 2002-334786 号公報、同 2002-8860 号公報、同 2002-334787 号公報、同 2002-15871 号公報、同 2002-334788 号公報、同 2002-43056 号公報、同 2002-334789 号公報、同 2002-75645 号公報、同 2002-338579 号公報、同 2002-105445 号公報、同 2002-343568 号公報、同 2002-141173 号公報、同 2002-352957 号公報、同 2002-203683 号公報、同 2002-363227 号公報、同 2002-231453 号公報、同 2003-3165 号公報、同 2002-234888 号公報、同 2003-27048 号公報、同 2002-255934 号公報、同 2002-260861 号公報、同 2002-280183 号公報、同 2002-299060 号公報、同 2002-302516 号公報、同 2002-305083 号公報、同 2002-305084 号公報、同 2002-308837 号公報、
米国特許公開第 2003/0175553 号、米国特許公開第 2006/0280965 号、米国特許公開第 2005/0112407 号、米国特許公開第 2009/0017330 号、米国特許公開第 2009/0030202 号、米国特許公開第 2005/0238919 号、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 2034538、等である。

【0057】

《電子輸送層》

本発明において電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する材料からなり、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよい。

本発明における電子輸送層の総膜厚については特に制限はないが、通常は 2 nm ~ 5 μ m の範囲内であり、より好ましくは 2 ~ 500 nm の範囲内であり、さらに好ましくは 5 ~ 200 nm の範囲内である。

【0058】

電子輸送層に用いられる材料 (以下、電子輸送材料という。) としては、電子の注入性又は輸送性、正孔の障壁性のいずれかを有していればよく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

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

10

20

30

40

50

ール誘導体、芳香族炭化水素環誘導体（ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、トリフェニレン等）等が挙げられる。

【0059】

また、配位子にキノリノール骨格やジベンゾキノリノール骨格を有する金属錯体、例えば、トリス（8 - キノリノール）アルミニウム（ Alq_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（ Znq ）等、及びこれらの金属錯体の中心金属が In 、 Mg 、 Cu 、 Ca 、 Sn 、 Ga 又は Pb に置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。

10

【0060】

その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に n 型 - Si 、 n 型 - SiC 等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

また、これらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

【0061】

本発明に係る電子輸送層においては、電子輸送層にドーパ材をゲスト材料としてドーピングして、 n 性の高い（電子リッチ）電子輸送層を形成してもよい。ドーパ材としては、金属錯体やハロゲン化金属など金属化合物等の n 型ドーパントが挙げられる。このような構成の電子輸送層の具体例としては、例えば、特開平 4 - 297076 号公報、同 10 - 270172 号公報、特開 2000 - 196140 号公報、同 2001 - 102175 号公報、*J. Appl. Phys.*, 95, 5773 (2004) 等の文献に記載されたものが挙げられる。

20

【0062】

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

米国特許第 6528187 号、米国特許第 7230107 号、米国特許公開第 2005 / 0025993 号、米国特許公開第 2004 / 0036077 号、米国特許公開第 2009 / 0115316 号、米国特許公開第 2009 / 0101870 号、米国特許公開第 2009 / 0179554 号、国際公開第 2003 / 060956 号、国際公開第 2008 / 132085 号、*Appl. Phys. Lett.*, 75, 4 (1999)、*Appl. Phys. Lett.*, 79, 449 (2001)、*Appl. Phys. Lett.*, 81, 162 (2002)、*Appl. Phys. Lett.*, 81, 162 (2002)、*Appl. Phys. Lett.*, 79, 156 (2001)、米国特許第 7964293 号、米国特許公開第 2009 / 030202 号、国際公開第 2004 / 080975 号、国際公開第 2004 / 063159 号、国際公開第 2005 / 085387 号、国際公開第 2006 / 067931 号、国際公開第 2007 / 086552 号、国際公開第 2008 / 114690 号、国際公開第 2009 / 069442 号、国際公開第 2009 / 066779 号、国際公開第 2009 / 054253 号、国際公開第 2011 / 086935 号、国際公開第 2010 / 150593 号、国際公開第 2010 / 047707 号、EP 2311826 号、特開 2010 - 251675 号公報、特開 2009 - 209133 号公報、特開 2009 - 124114 号公報、特開 2008 - 277810 号公報、特開 2006 - 156445 号公報、特開 2005 - 340122 号公報、特開 2003 - 45662 号公報、特開 2003 - 31367 号公報、特開 2003 - 282270 号公報、国際公開第 2012 / 115034 号、等である。

30

40

【0063】

本発明におけるより好ましい電子輸送材料としては、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導

50

体、ピラジン誘導体、トリアジン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾチオフェン誘導体、カルバゾール誘導体、アザカルバゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体が挙げられる。

電子輸送材料は単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

【0064】

《正孔阻止層》

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

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

前記正孔阻止層は、発光層の陰極側に隣接して設けられることが好ましい。

また、正孔阻止層の膜厚としては、好ましくは3～100nmの範囲内であり、さらに好ましくは5～30nmの範囲内である。

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

【0065】

《電子注入層》

本発明に係る電子注入層（「陰極バッファ層」ともいう）とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために陰極と発光層との間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されている。

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

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

【0066】

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土類金属化合物、酸化アルミニウムに代表される金属酸化物、リチウム8-ヒドロキシキノレート（Li q）等に代表される金属錯体等が挙げられる。また、前述の電子輸送材料を用いることも可能である。

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

【0067】

《正孔輸送層》

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

前記正孔輸送層の総膜厚については特に制限はないが、通常は5nm～5μmの範囲内であり、より好ましくは2～500nmの範囲内であり、さらに好ましくは5～200nmの範囲内である。

【0068】

正孔輸送層に用いられる材料（以下、正孔輸送材料という）としては、正孔の注入性又は輸送性、電子の障壁性のいずれかを有していればよく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

例えば、ポルフィリン誘導体、フタロシアニン誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾ

10

20

30

40

50

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

【0069】

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

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

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

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

正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、トリアリールアミン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、アザトリフェニレン誘導体、有機金属錯体、芳香族アミンを主鎖又は側鎖に導入した高分子材料又はオリゴマー等が好ましく用いられる。

【0070】

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

例えば、Appl. Phys. Lett., 69, 2160 (1996)、J. Lumin., 72-74, 985 (1997)、Appl. Phys. Lett., 78, 673 (2001)、Appl. Phys. Lett., 90, 183503 (2007)、Appl. Phys. Lett., 90, 183503 (2007)、Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)、Synth. Met., 87, 171 (1997)、Synth. Met., 91, 209 (1997)、Synth. Met., 111, 421 (2000)、SID Symposium Digest, 37, 923 (2006)、J. Mater. Chem., 3, 319 (1993)、Adv. Mater., 6, 677 (1994)、Chem. Mater., 15, 3148 (2003)、米国特許公開第2003/0162053号、米国特許公開第2002/0158242号、米国特許公開第2006/0240279号、米国特許公開第2008/0220265号、米国特許第5061569号、国際公開第2007/002683号、国際公開第2009/018009号、EP650955、米国特許公開第2008/0124572号、米国特許公開第2007/0278938号、米国特許公開第2008/0106190号、米国特許公開第2008/0018221号、

国際公開第2012/115034号、特表2003-519432号公報、特開2006-135145号、米国特許出願番号13/585981号等である。

正孔輸送材料は単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

【 0 0 7 1 】

《 電子阻止層 》

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

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

前記電子阻止層は、発光層の陽極側に隣接して設けられることが好ましい。

また、電子阻止層の膜厚としては、好ましくは3～100nmの範囲内であり、さらに好ましくは5～30nmの範囲内である。

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

【 0 0 7 2 】

《 正孔注入層 》

本発明に係る正孔注入層（「陽極バッファ層」ともいう）とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために陽極と発光層との間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されている。

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

【 0 0 7 3 】

正孔注入層は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、正孔注入層に用いられる材料としては、例えば前述の正孔輸送層に用いられる材料等が挙げられる。

中でも銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニン誘導体、特表2003-519432や特開2006-135145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、酸化バナジウムに代表される金属酸化物、アモルファスカーボン、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム錯体等に代表されるオルトメタル化錯体、トリアリールアミン誘導体等が好ましい。

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

【 0 0 7 4 】

《 含有物 》

前述した本発明における有機層は、さらに他の含有物が含まれていてもよい。

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

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

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

【 0 0 7 5 】

《 陽極 》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4eV以上、好ましくは4.5V以上）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、インジウムチンオキシド（ITO）、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。ま

10

20

30

40

50

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

【0076】

陽極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、又はパターン精度を余り必要としない場合は(100 μm 以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。

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

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 の範囲で選ばれる。

【0077】

《陰極》

陰極としては仕事関数の小さい(4 eV 以下)金属(電子注入性金属と称する。)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム、希土類金属等が挙げられる。

これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。

【0078】

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

なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であれば発光輝度が向上し好ましい。

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

【0079】

《支持基板》

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

【0080】

樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレンナフタレート(PEN)等のポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロファン、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート(TAC)、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート(CAP)、セルロースアセテ-

10

20

30

40

50

トフタレート、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類又はそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリル又はポリアリレート類、アートン（商品名JSR社製）又はアペル（商品名三井化学社製）といったシクロオレフィン系樹脂等を挙げられる。

【0081】

樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜又はその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよく、JIS K 7129 - 1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ 25 ± 0.5 、相対湿度（ 90 ± 2 ）%RH）が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のバリア性フィルムであることが好ましく、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、 $10^{-3} \text{ mL} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が、 $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

【0082】

バリア膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、窒化ケイ素等を用いることができる。さらに該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることがより好ましい。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。

【0083】

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

【0084】

不透明な支持基板としては、例えば、アルミ、ステンレス等の金属板、フィルムや不透明樹脂基板、セラミック製の基板等が挙げられる。

本発明に係る有機EL素子の発光の室温における外部取り出し量子効率、1%以上であることが好ましく、5%以上であるとより好ましい。

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

また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。

【0085】

<有機EL素子の作製方法>

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

前記有機層の形成方法は、特に制限はなく、従来公知の例えば真空蒸着法、湿式法（ウェットプロセスともいう）等による形成方法を用いることができ、本発明の有機エレクトロニクス材料を用いる場合には、湿式法を用いることが好ましい。

湿式法としては、例えばグラビア印刷法、フレキソ印刷法、スクリーン印刷法等の印刷法のほか、スピンコート法、キャスト法、インクジェット印刷法、ダイコート法、ブレードコート法、バーコート法、ロールコート法、ディップコート法、スプレーコート法、カーテンコート法、ドクターコート法、LB法（ラングミュア・プロジェクト法）等があるが、塗布液を容易に精度良く塗布することが可能で、かつ高生産性の点から、インクジェ

10

20

30

40

50

ットヘッドを用いたインクジェット印刷法により塗布することがより好ましい。

【0086】

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

本発明における有機層の形成は、1回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際は作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行うことが好ましい。

10

【0087】

《インクジェットヘッド》

本発明に適用可能なインクジェットヘッドは、例えば、特開2012-140017号公報、特開2013-010227号公報、特開2014-058171号公報、特開2014-097644号公報、特開2015-142979号公報、特開2015-142980号公報、特開2016-002675号公報、特開2016-002682号公報、特開2016-107401号公報、特開2017-109476号公報、特開2017-177626号公報等に記載されている構成からなるインクジェットヘッドを適宜選択して適用することができる。

20

【0088】

湿式法に用いる塗布液は、有機層を形成する材料が液媒体に均一に溶解される溶液でも、材料が固形分として液媒体に分散される分散液でも良い。分散方法としては、超音波、高剪断力分散やメディア分散等の分散方法により分散することができる。

液媒体としては、特に制限はなく、例えば、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロメタン、1,2-ジクロロエタン、ジクロロベンゼン、ジクロロヘキサノン等のハロゲン系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、ジエチルケトン、メチルイソブチルケトン、n-プロピルメチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、ベンゼン、トルエン、キシレン、メシチレン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族系溶媒、シクロヘキサン、デカリン、ドデカン等の脂肪族系溶媒、酢酸エチル、酢酸n-プロピル、酢酸n-ブチル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸エチル、 γ -ブチロラクトン、炭酸ジエチル等のエステル系溶媒、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル系溶媒、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド系溶媒、メタノール、エタノール、1-ブタノール、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、アセトニトリル、プロピオニトリル等のニトリル系溶媒、ジメチルスルホキシド、水又はこれらの混合液媒体等が挙げられる。

30

これらの液媒体の沸点としては、迅速に液媒体を乾燥させる観点から乾燥処理の温度未満の沸点が好ましく、具体的には $60 \sim 200$ の範囲内が好ましく、さらに好ましくは、 $80 \sim 180$ の範囲内である。

【0089】

塗布液は、塗布範囲を制御する目的や、塗布後の表面張力勾配に伴う液流動（例えば、コーヒリングと呼ばれる現象を引き起こす液流動）を抑制する目的に応じて、界面活性剤を含有することができる。

40

界面活性剤としては、溶媒に含まれる水分の影響、レベリング性、基板f1への濡れ性等の観点から、例えばアニオン性又はノニオン性の界面活性剤等が挙げられる。具体的には、含フッ素系活性剤等、国際公開第08/146681号、特開平2-41308号公報等に挙げられた界面活性剤を用いることができる。

【0090】

塗布膜の粘度についても、膜厚と同様に、有機層として必要とされる機能と有機材料の溶解度又は分散性により、適宜選択することが可能で、具体的には例えば $0.3 \sim 100$ mPa \cdot sの範囲内で選択することができる。

塗布膜の膜厚は、有機層として必要とされる機能と有機材料の溶解度又は分散性により

50

適宜選択することが可能で、具体的には例えば1～90 μmの範囲内で選択することができる。

湿式法により塗布膜を形成した後、上述した液媒体を除去する塗布工程を有することができる。乾燥工程の温度は特に制限されないが、有機層や透明電極や基材が損傷しない程度の温度で乾燥処理することが好ましい。具体的には、塗布液の組成等によって異なるため一概には言えないが、例えば、80以上の温度とすることができ、上限は300程度までは可能な領域と考えられる。時間は10秒以上10分以下程度とすることが好ましい。このような条件とすることにより、乾燥を迅速に行うことができる。

【0091】

《封止》

有機EL素子の封止に用いられる封止手段としては、例えば、封止部材と、電極、支持基板とを接着剤で接着する方法を挙げることができる。封止部材としては、有機EL素子の表示領域を覆うように配置されていればよく、凹板状でも、平板状でもよい。また、透明性、電気絶縁性は特に限定されない。

具体的には、ガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブテン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる1種以上の金属又は合金からなるものが挙げられる。

【0092】

本発明においては、有機EL素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム、金属フィルムを好ましく使用することができる。さらには、ポリマーフィルムはJIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ mL} / \text{m}^2 / 24 \text{ h}$ 以下、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度(25 ± 0.5 、相対湿度(90 ± 2)%)が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 / 24 \text{ h})$ 以下のものであることが好ましい。

【0093】

封止部材を凹状に加工するのは、サンドブラスト加工、化学エッチング加工等が使われる。

接着剤として具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化及び熱硬化型接着剤、2-シアノアクリル酸エステル等の湿気硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系等の熱及び化学硬化型(二液混合)を挙げることができる。また、ホットメルト型のポリアミド、ポリエステル、ポリオレフィンを挙げることができる。また、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂接着剤を挙げることができる。

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

【0094】

また、有機層を挟み支持基板と対向する側の電極の外側に該電極と有機層を被覆し、支持基板と接する形で無機物、有機物の層を形成し封止膜とすることも好適にできる。この場合、該膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、窒化ケイ素等を用いることができる。

【0095】

さらに該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造

10

20

30

40

50

を持たせることが好ましい。これらの膜の形成方法については特に限定はなく、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスタイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができる。

【0096】

封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相及び液相では、窒素、アルゴン等の不活性気体やフッ化炭化水素、シリコンオイルのような不活性液体を注入することが好ましい。また、真空とすることも可能である。また、内部に吸湿性化合物を封入することもできる。

10

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

【0097】

《保護膜、保護板》

有機層を挟み支持基板と対向する側の前記封止膜又は前記封止用フィルムの外側に、素子の機械的強度を高めるために、保護膜又は保護板を設けてもよい。特に、封止が前記封止膜により行われている場合には、その機械的強度は必ずしも高くないため、このような保護膜、保護板を設けることが好ましい。これに使用することができる材料としては、前記封止に用いたのと同様なガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等を用いることができるが、軽量かつ薄膜化ということからポリマーフィルムを用いることが好ましい。

20

【0098】

《光取り出し向上技術》

本発明における有機EL素子は、空気よりも屈折率の高い（屈折率1.6～2.1程度の範囲内）層の内部で発光し、発光層で発生した光のうち15%から20%程度の光しか取り出せないことが一般的に言われている。これは、臨界角以上の角度で界面（透明基板と空気との界面）に入射する光は、全反射を起こし素子外部に取り出すことができないことや、透明電極又は発光層と透明基板との間で光が全反射を起こし、光が透明電極又は発光層を導波し、結果として、光が素子側面方向に逃げるためである。

30

【0099】

この光の取り出しの効率を向上させる手法としては、例えば、透明基板表面に凹凸を形成し、透明基板と空気界面での全反射を防ぐ方法（例えば、米国特許第4774435号明細書）、基板に集光性を持たせることにより効率を向上させる方法（例えば、特開昭63-314795号公報）、素子の側面等に反射面を形成する方法（例えば、特開平1-220394号公報）、基板と発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法（例えば、特開昭62-172691号公報）、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法（例えば、特開2001-202827号公報）、基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間（含む、基板と外界間）に回折格子を形成する方法（特開平11-283751号公報）などが挙げられる。

40

【0100】

本発明においては、これらの方法を前記有機EL素子と組み合わせて用いることができるが、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法、又は基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間（含む、基板と外界間）に回折格子を形成する方法を好適に用いることができる。

透明電極と透明基板の間に低屈折率の媒質を光の波長よりも長い厚さで形成すると、透

50

明電極から出てきた光は、媒質の屈折率が低いほど、外部への取り出し効率が高くなる。

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

【0101】

低屈折率層としては、例えば、エアロゲル、多孔質シリカ、フッ化マグネシウム、フッ素系ポリマーなどが挙げられる。透明基板の屈折率は一般に1.5～1.7程度の範囲内であるので、低屈折率層は、屈折率がおよそ1.5以下であることが好ましい。またさらに1.35以下であることが好ましい。

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

【0102】

全反射を起こす界面又は、いずれかの媒質中に回折格子を導入する方法は、光取り出し効率の向上効果が高いという特徴がある。この方法は、回折格子が1次の回折や、2次の回折といった、いわゆるブラッグ回折により、光の向きを屈折とは異なる特定の向きに変えることができる性質を利用して、発光層から発生した光のうち、層間での全反射等により外に出ることができない光を、いずれかの層間又は、媒質中（透明基板内や透明電極内）に回折格子を導入することで光を回折させ、光を外に取り出そうとするものである。

導入する回折格子は、二次元的な周期屈折率を持っていることが望ましい。これは、発光層で発光する光はあらゆる方向にランダムに発生するので、ある方向にのみ周期的な屈折率分布を持っている一般的な一次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。

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

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

【0103】

《集光シート》

本発明における有機EL素子は、支持基板（基板）の光取り出し側に、例えばマイクロレンズアレイ上の構造を設けるように加工すること、又は、いわゆる集光シートと組み合わせることにより、特定方向、例えば素子発光面に対し正面方向に集光することにより、特定方向上の輝度を高めることができる。

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

【0104】

集光シートとしては、例えば液晶表示装置のLEDバックライトで実用化されているものを用いることが可能である。このようなシートとして例えば、住友スリーエム社製輝度上昇フィルム（BEF）などを用いることができる。プリズムシートの形状としては、例えば基材に頂角90度、ピッチ50μmの状のストライプが形成されたものであってもよいし、頂角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であっても良い。

また、有機EL素子からの光放射角を制御するために光拡散板・フィルムを、集光シートと併用してもよい。例えば、（株）きもと製拡散フィルム（ライトアップ）などを用いることができる。

【0105】

《用途》

本発明における有機ＥＬ素子は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。

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

本発明における有機ＥＬ素子においては、必要に応じ成膜時にメタルマスクやインクジェット印刷法等でパターンニングを施してもよい。パターンニングする場合は、電極のみをパターンニングしてもよいし、電極と発光層をパターンニングしてもよいし、素子全層をパターンニングしてもよく、素子の作製においては、従来公知の方法を用いることができる。

10

【０１０６】

《照明装置の一態様

本発明における有機ＥＬ素子を具備した、照明装置の一態様について説明する。

前記有機ＥＬ素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚さ３００μｍのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラックストラックＬＣ０６２９Ｂ）を適用し、これを陰極上に重ねて透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からＵＶ光を照射して、硬化させて、封止し、図１、図２に示すような照明装置を形成することができる。

図１は、照明装置の概略図を示し、本発明に係る有機ＥＬ素子１０１はガラスカバー１０２で覆われている（なお、ガラスカバーでの封止作業は、有機ＥＬ素子１０１を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度９９．９９９％以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った。）。

20

図２は、照明装置の断面図を示し、図２において、１０５は陰極、１０６は有機ＥＬ層、１０７は透明電極付きガラス基板を示す。なお、ガラスカバー１０２内には窒素ガス１０８が充填され、捕水剤１０９が設けられている。

【０１０７】

〔有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液〕

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液は、前記有機エレクトロニクス材料を含有することを特徴とする。

30

前記有機エレクトロニクス材料を含有することで、当該有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液を用いて作製した有機ＥＬ素子が、深青色を発光し、発光効率及び発光寿命に優れ、低駆動電圧であり、また、駆動時の電圧上昇が抑えられ経時安定性に優れたものとすることができる。

【０１０８】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液は、例えば、グラビア印刷法、フレキソ印刷法、スクリーン印刷法等の印刷法のほか、スピンコート法、キャスト法、インクジェット印刷法、ダイコート法、ブレードコート法、バーコート法、ロールコート法、ディップコート法、スプレーコート法、カーテンコート法、ドクターコート法、ＬＢ法（ラングミュア・プロジェクト法）等により塗布されるが、有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液を容易に精度良く塗布することが可能で、かつ高生産性の点から、インクジェットヘッドを用いたインクジェット印刷法により塗布されることがより好ましい。

40

【０１０９】

有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液の液媒体への分散方法、液媒体の種類や、有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液が含有する界面活性剤、有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液が塗布されてなる塗布膜の粘度や膜厚については、前記「有機ＥＬ素子の作製方法」の項目で説明したとおりである。

【実施例】

【０１１０】

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

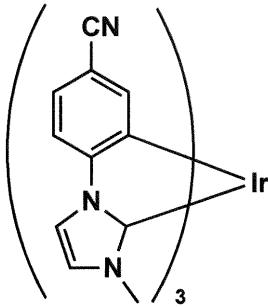
50

ではない。なお、実施例において「部」又は「%」の表示を用いるが、特に断りがない限り「体積%」を表す。また、実施例で使用した例示化合物 D - 1 ~ D - 40 は、一般式 (1) で表される構造を有する化合物の具体例の D - 1 ~ D - 40 に対応する。また、実施例で使用した比較化合物 1 の構造を示す。

【0111】

【化10】

比較化合物1



10

【0112】

[実施例 1]

《有機 EL 素子 1 - 1 の作製》

20

100 mm x 100 mm x 1.1 mm のガラス基板上に、陽極としてITO (インジウムチンオキシド) を100 nm の厚さで成膜した基板 (Avanstrate 株式会社製、NA - 45) にパターニングを行った。その後、このITO 透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UV オゾン洗浄を5分間行った。

【0113】

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

30

【0114】

次いで、真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、HT - 1 の入った加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm / 秒で透明支持基板に蒸着し、層厚 10 nm の正孔注入層を形成した。

【0115】

さらに、HT - 2 の入った加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm / 秒で正孔注入層上に蒸着し、層厚 30 nm の正孔輸送層を形成した。

40

【0116】

さらに、比較化合物 1 とHost - 1 の入った加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.1 nm / 秒、0.010 nm / 秒で正孔輸送層上に共蒸着し、層厚 40 nm の発光層を形成した。

【0117】

さらに、ET - 1 の入った加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm / 秒で発光層上に蒸着し、層厚 10 nm の正孔阻止層を形成した。

【0118】

さらに、ET - 2 の入った加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm / 秒で正孔阻止層上に蒸着し、層厚 30 nm の電子輸送層を形成した。

50

【 0 1 1 9 】

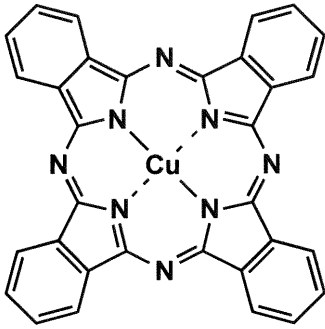
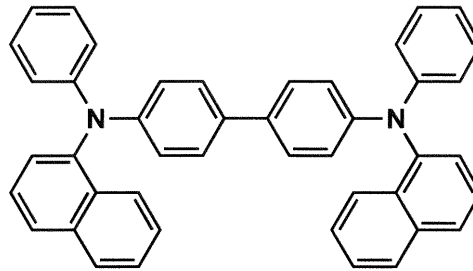
引き続き、フッ化リチウムを電子輸送層上に蒸着して層厚 0 . 5 n m の電子注入層（陰極バッファ層）を形成し、さらに、アルミニウムを電子注入層上に蒸着して厚さ 1 1 0 n m の陰極を形成し、有機 E L 素子 1 - 1 を作製した。

本実施例において使用される化合物は、下記のとりの化学構造式を有するものである。

【 0 1 2 0 】

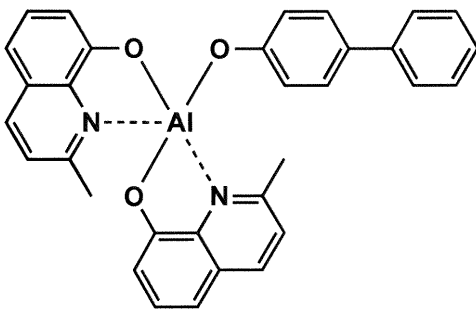
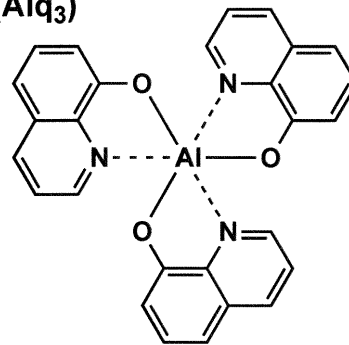
【 化 1 1 】

HT-1(CuPc)

HT-2(α -NPD)

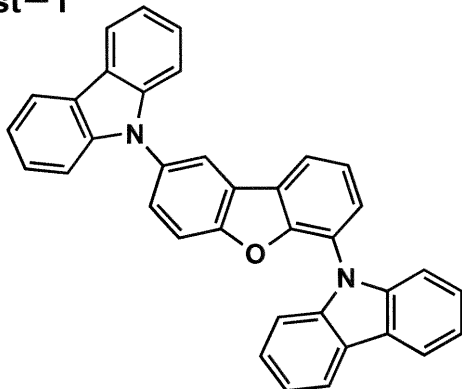
10

ET-1(BAlq)

ET-2(Alq₃)

20

Host-1



30

【 0 1 2 1 】

《 有機 E L 素子 1 - 2 ~ 1 - 4 1 の作製 》

有機 E L 素子 1 - 1 の作製において、比較化合物 1 を表 I に記載の化合物に変更した以外は同様にして、有機 E L 素子 1 - 2 ~ 1 - 4 1 を各々作製した。

【 0 1 2 2 】

《 有機 E L 素子 1 - 1 ~ 1 - 4 1 の評価 》

得られた有機 E L 素子 1 - 1 ~ 1 - 4 1 を評価するに際しては、作製後の各有機 E L 素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚さ 3 0 0 μ m のガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材としてエポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラックストラック LC 0 6 2 9 B）を適用し、これを陰極上に重ねて透明支持基板と密着させ、ガラス基板

40

50

側からUV光を照射して硬化させて封止し、図1及び図2に示すような照明装置を作製した。

このようにして作製した各サンプルについて下記の評価を行った。評価結果を表Iに示す。

【0123】

(1) 外部取り出し量子効率(発光効率ともいう。)

有機EL素子を用いて室温(約23~25)、2.5mA/cm²の定電流条件下による点灯を行い、点灯開始直後の発光輝度(L)[cd/m²]を測定することにより、外部取り出し量子効率()を算出した。

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

10

【0124】

(2) 半減寿命

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

【0125】

(3) 駆動電圧

有機EL素子を室温(約23~25)、2.5mA/cm²の定電流条件下で駆動したときの電圧を各々測定し、その測定結果から下記に示すように、有機EL素子1-1を100とする相対値を求めた。

20

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

なお、値が小さい方が比較例に対して駆動電圧が低いことを示す。

【0126】

(4) 駆動時の電圧上昇

有機EL素子を室温(約23~25)、2.5mA/cm²の定電流条件下で駆動したときの電圧を各々測定し、その測定結果から下記計算式より駆動時の電圧上昇を求めた。なお、駆動時の電圧上昇は有機EL素子1-1を100とする相対値で表した。

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

30

なお、値が小さいほうが比較例に対して駆動時の電圧上昇が小さいことを示す。

【0127】

(5) 経時安定性

有機EL素子を60・70%RHの条件で一ヶ月間保存し、保存前後における各電力効率を求めた。各電力効率から下記式に従って電力効率比を求め、これを経時安定性の尺度とした。

$$\text{経時安定性(\%)} = (\text{保存後の電力効率} / \text{保存前の電力効率}) \times 100$$

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

40

【0128】

【表 1】

表 I

有機EL素子 No.	ドーパント	外部取り出し 量子効率	半減寿命	駆動電圧	駆動時の 電圧上昇	経時 安定性	備考
1-1	比較化合物1	100	100	100	100	42	比較例
1-2	D-1	120	140	82	81	72	本発明
1-3	D-2	161	114	83	85	79	本発明
1-4	D-3	107	132	78	82	79	本発明
1-5	D-4	160	109	83	83	75	本発明
1-6	D-5	159	126	79	84	72	本発明
1-7	D-6	123	133	78	83	71	本発明
1-8	D-7	153	161	90	92	80	本発明
1-9	D-8	115	139	89	93	84	本発明
1-10	D-9	158	144	82	88	91	本発明
1-11	D-10	162	142	73	76	74	本発明
1-12	D-11	141	106	90	92	83	本発明
1-13	D-12	152	141	75	76	86	本発明
1-14	D-13	132	144	88	91	90	本発明
1-15	D-14	162	147	92	93	87	本発明
1-16	D-15	110	147	74	78	78	本発明
1-17	D-16	134	141	73	77	82	本発明
1-18	D-17	121	127	88	89	79	本発明
1-19	D-18	105	153	85	87	88	本発明
1-20	D-19	112	154	92	91	69	本発明
1-21	D-20	132	141	84	82	91	本発明
1-22	D-21	135	162	86	84	76	本発明
1-23	D-22	153	146	79	82	76	本発明
1-24	D-23	124	111	74	72	87	本発明
1-25	D-24	128	129	87	88	72	本発明
1-26	D-25	122	107	75	74	70	本発明
1-27	D-26	131	141	87	82	68	本発明
1-28	D-27	106	127	85	84	71	本発明
1-29	D-28	144	117	82	80	89	本発明
1-30	D-29	141	148	90	88	70	本発明
1-31	D-30	112	104	78	80	76	本発明
1-32	D-31	104	112	82	79	88	本発明
1-33	D-32	110	108	76	77	78	本発明
1-34	D-33	111	113	92	90	73	本発明
1-35	D-34	136	160	72	76	84	本発明
1-36	D-35	139	112	79	75	70	本発明
1-37	D-36	149	146	86	84	72	本発明
1-38	D-37	131	139	86	86	85	本発明
1-39	D-38	147	161	85	83	75	本発明
1-40	D-39	120	143	84	85	76	本発明
1-41	D-40	158	141	72	71	71	本発明

【0129】

表 I から明らかなとおり、一般式 (1) で表される構造を有する化合物を用いた有機 EL 素子は、比較例の有機 EL 素子に比べ、発光効率及び発光寿命に優れ、低駆動電圧であることが明らかであり、また駆動時の電圧上昇も抑えられ、経時安定性に優れていること

10

20

30

40

50

も分かった。

【0130】

[実施例 2]

《有機EL素子2-1の作製》

100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上に、陽極としてITO（インジウムチンオキシド）を100nmの厚さで成膜した基板（Avanstrate株式会社製、NA-45）にパターニングを行った。その後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥室素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

【0131】

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

【0132】

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

【0133】

この第2正孔輸送層上に、100mgのHost-3と、20mgの比較化合物1と、0.5mgのDG-1と、0.2mgのDR-1とを10mLの酢酸ブチルに溶解した溶液を用いて600rpm、30秒の条件下、スピコート法により薄膜を形成した。さらに、60℃で1時間真空乾燥し、層厚約70nmの発光層を形成した。

【0134】

次に、この発光層上に、50mgのET-3を10mLのヘキサフルオロイソプロパノール（HFIP）に溶解した溶液を用いて1500rpm、30秒の条件下、スピコート法により薄膜を形成した。さらに、60℃で1時間真空乾燥し、層厚約20nmの電子輸送層を形成した。

【0135】

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、フッ化カリウムを電子輸送層上に蒸着して層厚0.4nmの電子注入層を形成し、さらに、アルミニウムを電子注入層上に蒸着して厚さ110nmの陰極を形成し、有機EL素子2-1を作製した。

本実施例において使用される化合物は、下記のとおり化学構造式を有するものである。

【0136】

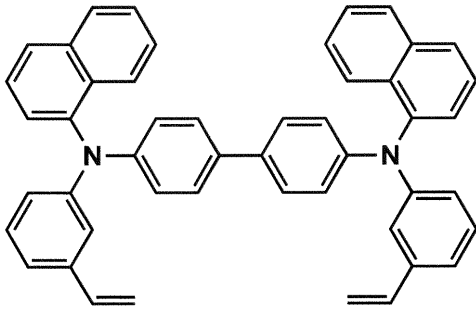
10

20

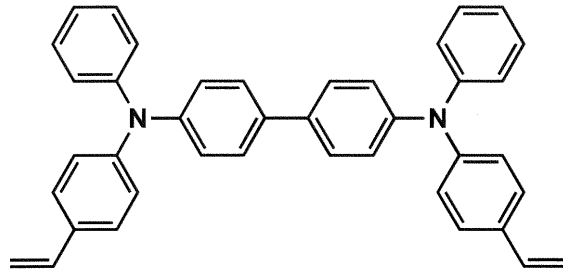
30

【化 1 2】

HT-3

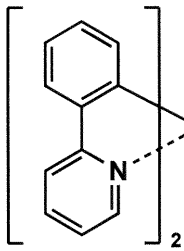
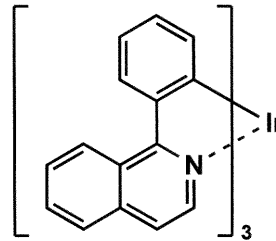


HT-4



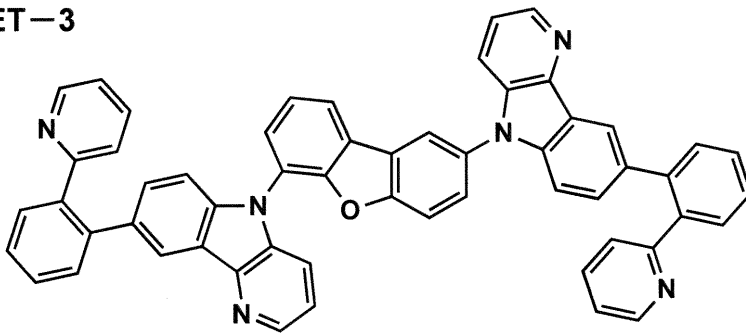
10

DG-1

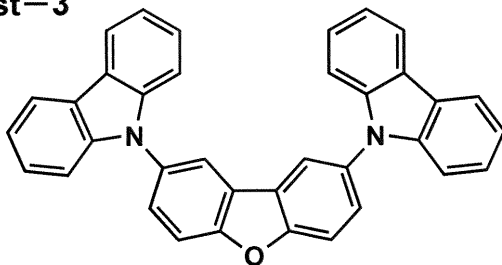
DR-1(Ir(piq)₃)

20

ET-3



Host-3



30

【0137】

《有機EL素子2-2～2-41の作製》

有機EL素子2-1の作製において、比較化合物1を表IIに記載の化合物に変更した以外は同様にして、有機EL素子2-2～2-41を各々作製した。

40

【0138】

《有機EL素子2-1～2-41の評価》

得られた有機EL素子进行评估するに際しては、実施例1の有機EL素子1-1と同様に封止し、図1及び図2に示すような照明装置を作製して評価した。

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

【0139】

50

【表 2】

表 II

有機EL素子 No.	ドーパント	外部取り出し 量子効率	半減寿命	駆動電圧	駆動時の 電圧上昇	経時 安定性	備考
2- 1	比較化合物1	100	100	100	100	42	比較例
2- 2	D- 1	118	132	91	90	72	本発明
2- 3	D- 2	110	144	74	75	76	本発明
2- 4	D- 3	130	150	80	81	73	本発明
2- 5	D- 4	152	112	91	88	77	本発明
2- 6	D- 5	121	127	83	84	89	本発明
2- 7	D- 6	150	147	82	78	88	本発明
2- 8	D- 7	116	139	78	82	88	本発明
2- 9	D- 8	120	162	89	86	90	本発明
2-10	D- 9	158	136	79	77	68	本発明
2-11	D-10	149	157	85	82	69	本発明
2-12	D-11	155	137	72	71	89	本発明
2-13	D-12	146	147	87	90	91	本発明
2-14	D-13	154	138	82	81	75	本発明
2-15	D-14	125	153	89	86	90	本発明
2-16	D-15	149	126	84	82	88	本発明
2-17	D-16	113	129	81	84	90	本発明
2-18	D-17	145	124	88	90	76	本発明
2-19	D-18	130	121	86	83	82	本発明
2-20	D-19	152	141	79	76	79	本発明
2-21	D-20	139	133	89	86	68	本発明
2-22	D-21	129	119	89	82	70	本発明
2-23	D-22	154	112	74	76	69	本発明
2-24	D-23	158	148	79	81	86	本発明
2-25	D-24	114	127	89	86	88	本発明
2-26	D-25	108	125	80	84	82	本発明
2-27	D-26	110	129	85	84	73	本発明
2-28	D-27	155	147	83	81	80	本発明
2-29	D-28	135	115	77	74	71	本発明
2-30	D-29	153	152	83	82	89	本発明
2-31	D-30	105	108	83	92	76	本発明
2-32	D-31	108	115	82	96	86	本発明
2-33	D-32	103	120	86	89	82	本発明
2-34	D-33	112	115	85	88	75	本発明
2-35	D-34	154	116	90	92	78	本発明
2-36	D-35	123	139	86	88	80	本発明
2-37	D-36	149	112	85	82	77	本発明
2-38	D-37	124	134	77	72	70	本発明
2-39	D-38	109	133	81	80	82	本発明
2-40	D-39	129	125	85	88	77	本発明
2-41	D-40	108	124	83	85	87	本発明

【 0 1 4 0 】

表IIから明らかなとおり、本発明に係る一般式(1)で表される構造を有する化合物を用いた有機EL素子は、比較例の有機EL素子に比べ、発光効率及び発光寿命に優れ、低駆動電圧であることが明らかであり、また駆動時の電圧上昇も抑えられ、経時安定性に優

10

20

30

40

50

れていることも分かった。

【0141】

[実施例3]

《有機EL素子3-1の作製》

100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上に、陽極としてITO（インジウムチンオキsid）を100nmの厚さで成膜した基板（Avanstrate株式会社製、NA-45）にパターニングを行った。その後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥室素ガスで乾燥して、UVオゾン洗浄を5分間行った。

【0142】

この透明支持基板上に、ポリ（3,4-エチレンジオキシチオフエン）-ポリスチレンスルホネート（PEDOT/PSS、Bayer株式会社製、Baytron P A14083）を純水で70質量%に希釈した溶液を用い、スピンコート法により薄膜を形成した後、200℃にて1時間乾燥し、層厚30nmの第1正孔輸送層を形成した。

【0143】

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

【0144】

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

【0145】

この発光層上に、電子輸送材料としてのET-4の1-ブタノール溶液を用い、スピンコート法により薄膜を形成し、層厚20nmの電子輸送層を形成した。

【0146】

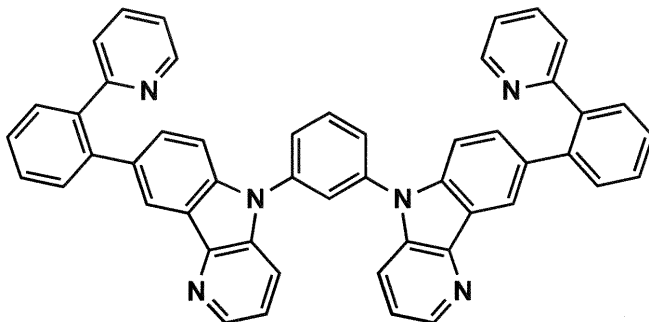
この基板を、真空蒸着装置に取付け、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した。次いで、フッ化リチウムを電子輸送層上に蒸着して層厚1.0nmの電子注入層を形成し、アルミニウムを電子注入層上に蒸着して厚さ110nmの陰極を形成し、有機EL素子3-1を作製した。

本実施例において使用される化合物は、下記のとりの化学構造式を有するものである。

【0147】

【化13】

ET-4



【0148】

《有機EL素子3-2～3-40の作製》

有機EL素子3-1の作製において、化合物D-1を化合物D-2～D-40に変更し

た以外は同様にして、有機ＥＬ素子３－２～３－４０を各々作製した。

【０１４９】

《有機ＥＬ素子３－１～３－４０の評価》

得られた有機ＥＬ素子を評価するに際しては、実施例１の有機ＥＬ素子１－１と同様に封止し、図１及び図２に示すような照明装置を作製して評価した。

このようにして作製した各サンプルに対し点灯試験を実施し、それぞれの装置が良好に発光することを確認した。

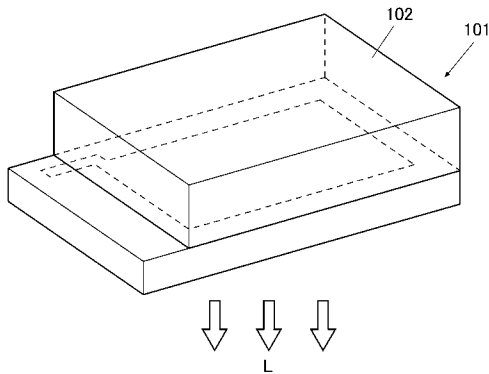
【符号の説明】

【０１５０】

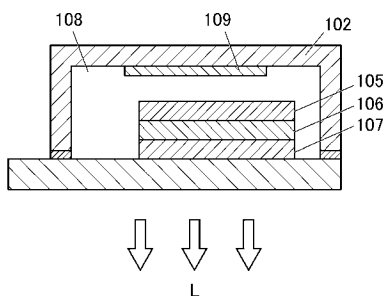
- １０１ 有機ＥＬ素子
- １０２ ガラスカバー
- １０５ 陰極
- １０６ 有機ＥＬ層
- １０７ 透明電極付きガラス基板
- １０８ 窒素ガス
- １０９ 捕水剤

10

【図１】



【図２】



フロントページの続き

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 BB04 BB06 BB07 BB08 CC07 CC21
DD59 DD64 DD67 DD70

专利名称(译)	非离子有机电子材料，电子设备，有机电致发光元件以及用于生产有机电致发光元件的溶液		
公开(公告)号	JP2020072194A	公开(公告)日	2020-05-07
申请号	JP2018205722	申请日	2018-10-31
[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		
[标]发明人	田中達夫 片倉利恵 北弘志		
发明人	田中 達夫 片倉 利恵 北 弘志		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06		
FI分类号	H05B33/14.B C09K11/06.660		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/BB03 3K107/BB04 3K107/BB06 3K107/BB07 3K107/BB08 3K107/CC07 3K107/CC21 3K107/DD59 3K107/DD64 3K107/DD67 3K107/DD70		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：提供一种具有新颖结构的非离子有机电子材料，该材料显示出与常规Ir-卡宾配合物相比可发出的深蓝色光，并可以改善整个配合物的稳定性。由以下通式（1）表示的非离子有机电子材料。[选择图]无

(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2020-72194 (P2020-72194A) (43) 公開日 令和2年5月7日 (2020.5.7)
(51) Int. Cl.	H01L 51/50 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)	F I H05B 33/14 C09K 11/06	B 660 テーマコード（参考） 3K107
審査請求 未請求 請求項の数 5 O L （全 39 頁）			
(21) 出願番号 (22) 出願日	特願2018-205722 (P2018-205722) 平成30年10月31日 (2018.10.31)	(71) 出願人 コニカミノルタ株式会社 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 110001254 (74) 代理人 特許業務法人光陽国際特許事務所 田中 達夫 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ ニカミノルタ株式会社内 (72) 発明者 片倉 利恵 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ ニカミノルタ株式会社内 (72) 発明者 北 弘志 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ ニカミノルタ株式会社内	最終頁に続く
(54) 【発明の名称】 非イオン性有機エレクトロニクス材料、電子デバイス、有機エレクトロルミネッセンス素子及び有機エレクトロルミネッセンス素子作製用溶液			