

(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2003-142267

(P2003-142267A)

(43)公開日 平成15年5月16日(2003.5.16)

(51) Int.Cl ⁷	識別記号	F I	テ-マコード ⁸ (参考)
H 05 B 33/14		H 05 B 33/14	B 3 K 007
C 09 K 11/06	610	C 09 K 11/06	610
	650		650
	660		660
H 05 B 33/12		H 05 B 33/12	E

審査請求 未請求 請求項の数 30〇L (全 69数) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2001-353126(P2001-353126)

(71)出願人 000001270

コニカ株式会社

東京都新宿区西新宿1丁目26番2号

(22)出願日 平成13年11月19日(2001.11.19)

(72)発明者 植田 則子

東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会社

内

(31)優先権主張番号 特願2001-254073(P2001-254073)

(72)発明者 山田 岳俊

東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会社

内

(32)優先日 平成13年8月24日(2001.8.24)

(72)発明者 研里 善幸

東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会社

内

(33)優先権主張国 日本(JP)

最終頁に続く

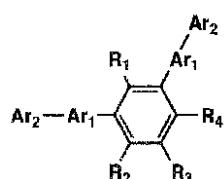
(54)【発明の名称】有機エレクトロルミネッセンス素子材料、及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子
および表示装置

(57)【要約】

【課題】発光輝度・寿命に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子、特に発光輝度・寿命に優れた青～青紫色に発光する有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】電界の印加により発光する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、下記一般式(1)で表される有機化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子、有機エレクトロルミネッセンス素子材料、及び表示装置。

【化1】一般式(1)

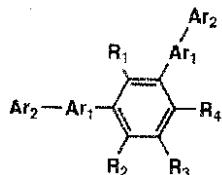


【特許請求の範囲】

【請求項1】 電界の印加により発光する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、下記一般式(1)で表される有機化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化1】

一般式(1)

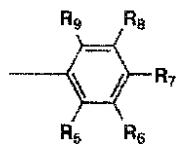


10

[式中、R₁～R₄はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子を表し、Ar₁は2価の芳香族炭化水素基を表し、Ar₂は下記の一般式(2)で表されるアリール基を表す。]

【化2】

一般式(2)



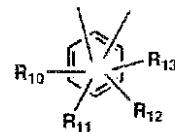
[式中、R₉は水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子を表し、R₅～R₈はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、R₅～R₉のうち隣接するものは結合して環を形成しても良い。]

【請求項2】 一般式(1)のAr₁が下記一般式(3)～(5)の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基を表すことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

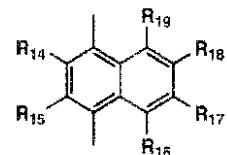
【化3】

*

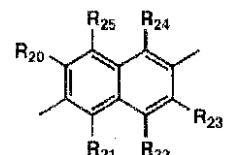
一般式(3)



一般式(4)



一般式(5)

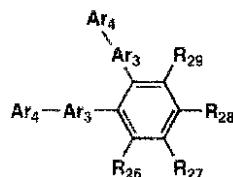


[式中、R₁₀～R₂₅はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アルコキシ基またはハロゲン原子を表す。]

20 【請求項3】 電界の印加により発光する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、下記一般式(6)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化4】

一般式(6)

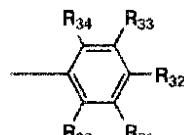


30

[式中、R₂₆～R₂₉はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子を表し、Ar₃は2価の芳香族炭化水素基を表し、Ar₄は下記の一般式(7)で表されるアリール基を表す。]

【化5】

一般式(7)



40

[式中、R₃₄は水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子を表し、R₃₀～R₃₃はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、R₃₀～R₃₄のうち隣接するものは結合して環を形成しても良い。]

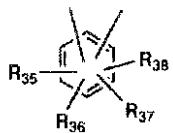
【請求項4】 一般式(6)のAr₃が下記一般式

(8)～(10)の中から選ばれるいずれかひとつの2

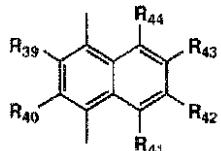
50 価のアリーレン基を表すことを特徴とする請求項3に記

載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

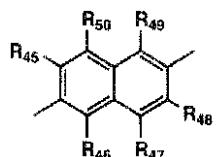
【化6】 一般式(8)



一般式(9)



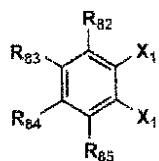
一般式(10)



〔式中、R₃₅～R₅₀はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アルコキシ基またはハロゲン原子を表す。〕

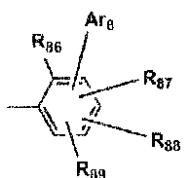
【請求項5】 電界の印加により発光する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、下記一般式(11)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化7】 一般式(11)



〔式中、R₈₂～R₈₅はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、置換又は無置換のアリール基又はハロゲン原子を表し、X₁は、下記一般式(12)で表されるアリール基を表す。〕

【化8】 一般式(12)

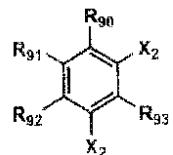


〔式中、R₈₆はアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子を表し、R₈₇～R₈₉はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アルコキシ基、置換又は無置換のアリール基またはハロゲン原子を表す。Ar₈は芳香族炭化水素基を表す。〕

【請求項6】 電界の印加により発光する有機エレクト

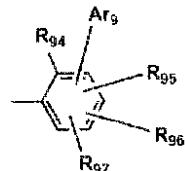
ロルミネッセンス素子であって、下記一般式(13)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化9】 一般式(13)



〔式中、R₉₀～R₉₃はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、置換又は無置換のアリール基又はハロゲン原子を表し、X₂は、下記一般式(14)で表されるアリール基を表す。〕

【化10】 一般式(14)



〔式中、R₉₄はアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子を表し、R₉₅～R₉₇はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アルコキシ基、置換又は無置換のアリール基またはハロゲン原子を表す。Ar₉は芳香族炭化水素基を表す。〕

【請求項7】 前記一般式(1)で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

30 【請求項8】 一般式(1)のAr₁が前記一般式(3)～(5)の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基で表されることを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項9】 前記一般式(6)で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項10】 一般式(6)のAr₃が前記一般式(8)～(10)の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基を表すことを特徴とする請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

40 【請求項11】 前記一般式(11)で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項12】 前記一般式(13)で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項13】 前記有機エレクトロルミネッセンス素子は、CIE色度座標の紫青、青紫又は紫の領域で発光することを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項14】 電子が流入する陰極と、前記陰極と隣接する有機化合物からなる電子輸送層と、正孔が流入する陽極と、前記陽極と隣接する有機化合物からなる正孔

輸送層とを有し、前記有機化合物が、前記電子輸送層と前記正孔輸送層の間に挟持される発光層を構成していることを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項15】 電子が流入する陰極と、前記陰極と隣接する有機化合物からなる電子輸送層と、正孔が流入する陽極と、電子と正孔が再結合して発光する発光層と、前記陽極と隣接する有機化合物からなる正孔輸送層とを有し、前記有機化合物は、前記陰極と前記発光層の間に挟持される電子輸送層に含有されることを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項16】 電子が流入する陰極と、前記陰極と隣接する有機化合物からなる電子輸送層と、正孔が流入する陽極と、電子と正孔が再結合して発光する発光層と、前記陽極と隣接する有機化合物からなる正孔輸送層とを有し、前記有機化合物は、前記発光層と前記電子輸送層の間に挟持される正孔プロック層に含有されることを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項17】 前記陰極と前記電子輸送層の間に、バッファー層を有することを特徴とする請求項13に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項18】 蛍光性化合物と燐光性化合物の両方を含有する発光層をもつ有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記蛍光性化合物が前記一般式(1)で表される化合物を含有し、かつ、素子となった状態での電界発光によって得られる発光波長は、前記蛍光性化合物の蛍光極大波長よりも長波であ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19】 一般式(1)のAr₁が前記一般式(3)～(5)の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基で表されることを特徴とする請求項18に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項20】 蛍光性化合物と燐光性化合物の両方を含有する発光層をもつ有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記蛍光性化合物が前記一般式(6)で表される化合物を含有し、かつ、素子となった状態での電界発光によって得られる発光波長は、前記蛍光性化合物の蛍光極大波長よりも長波であ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21】 一般式(6)のAr₃が前記一般式(8)～(10)の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基を表すことを特徴とする請求項20に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項22】 蛍光性化合物と燐光性化合物の両方を含有する発光層をもつ有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記蛍光性化合物が前記一般式(11)で表される化合物を含有し、かつ、素子となった状態での電界発光によって得られる発光波長は、前記蛍光性化合物*50

*物の蛍光極大波長よりも長波であ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23】 蛍光性化合物と燐光性化合物の両方を含有する発光層をもつ有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記蛍光性化合物が前記一般式(13)で表される化合物を含有し、かつ、素子となった状態での電界発光によって得られる発光波長は、前記蛍光性化合物の蛍光極大波長よりも長波であ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。

10 【請求項24】 燐光性化合物が、重金属錯体系化合物であることを特徴とする請求項18～23のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項25】 燐光性化合物が、元素の周期律表におけるVIII属の金属を中心金属とする錯体系化合物であることを特徴とする請求項24に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

15 【請求項26】 燐光性化合物が、オスミウム、イリジウム、または、白金錯体系化合物であることを特徴とする請求項25に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項27】 燐光性化合物からの発光の極大波長よりも更に長波な領域に、蛍光極大波長を有する蛍光性化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする請求項18～26のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20 【請求項28】 少なくとも、請求項1～6、請求項13～27のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を複数備えたことを特徴とする表示装置。

【請求項29】 表示装置が、発光の極大波長が異なる前記有機エレクトロルミネッセンス素子を同一基板上に2つ以上設けていることを特徴とする請求項28に記載の表示装置。

25 【請求項30】 光を吸収し、該吸収した光と異なる極大波長に変換して発光する変換層を有し、前記変換層は、前記有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の極大波長を変換することを特徴とする請求項28又は29に記載の表示装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子材料、及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子および表示装置に関し、更に詳しくは発光輝度・寿命に優れた青～青紫色に発光する有機エレクトロルミネッセンス素子材料、及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子および表示装置に関する。

【0002】

【従来の技術】有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子と略記することもある)は、蛍光性有機化合物からなる単数または複数の薄膜、陰極、陽極等

を有し、薄膜を陰極と陽極で挟持した構成である。

【0003】陰極と陽極に電界を印加すると、陰極から注入した電子と陽極から注入した正孔が結合して励起子（エキシトン）が生成される。生成されたエキシトンが失活する際に光の放出（蛍光・燐光）が起きて有機EL素子が発光する。

【0004】有機EL素子は、数V～数十V程度の低電圧の印加で面発光が可能なため、低消費電力であって視認性が高い。さらに、薄膜型の完全固体素子であるので、R（赤色）、G（緑色）、B（青色）の発光波長の異なる複数の有機EL素子を並べ、有機EL素子の発光により画像を表示するフルカラーの表示装置として、省スペース、携帯性等の観点からも注目されている。

【0005】R、G、Bの有機EL素子においては、発光輝度、発光寿命等の性能面でさらなる向上が望まれている。また、フルカラーの表示装置としては、特開平3-152897号で、青色発光する有機EL素子と、青色発光した光を蛍光変換により緑色や赤色の発光を得る方法でフルカラーの表示装置が開示されている。

【0006】ここで、青色の発光より短波な青紫色～近紫外に発光する有機EL素子が得られれば、これを光源として、ユーロピウム錯体のようなストークスシフトの大きな蛍光体を用いることにより色純度の良い蛍光変換を行える。

【0007】また、素子の外部取り出し量子効率（ext）を向上する手段として、プリンストン大より、励起三重項からの燐光発光を用いる有機EL素子の報告（M. A. Baldo et al., *nature*, 395巻、151-154ページ（1998年））がされて以来、燐光発光を利用した有機EL素子の研究が活発になってきている（例えば、M. A. Baldo et al., *nature*, 403巻、17号、750-753ページ（2000年）、US特許6,097,147号など）。励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られ照明用にも応用可能であり注目されている。

【0008】ここで、燐光性化合物をドーパントとして用いるときのホストは、燐光性化合物の発光極大波長よりも短波な領域に発光極大波長を有することが必要であり、これらの材料はまだまだ開発の余地がある。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光特性の改善を目的になされたものであり、発光特性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子、それを可能にする素子材料の提供、および本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いた低消費電力、高輝度な表示装置を提供するものである。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記の目的で銳意検討した結果、特定の構造を有する化合物を有機EL素子に用いることで、発光輝度・寿命に優れた有機EL素子が得られることを見出した。また、本発明の化合物を電子輸送層に含有させることで、発光効率の向上した有機EL素子が得られることを見いたした。さらに、本発明の化合物を発光層に含有し、そこにリン光発光化合物をドープすることで、発光効率の向上した有機EL素子が得られることを見いたした。

【0011】本発明の上記目的は、以下の構成によって達成された。

1. 電界の印加により発光する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記一般式（1）で表される有機化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0012】2. 一般式（1）のAr₁が前記一般式（3）～（5）の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基を表すことを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0013】3. 電界の印加により発光する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記一般式（6）で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0014】4. 一般式（6）のAr₃が前記一般式（8）～（10）の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基を表すことを特徴とする前記3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0015】5. 電界の印加により発光する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記一般式（11）で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0016】6. 電界の印加により発光する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記一般式（13）で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0017】7. 前記一般式（1）で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0018】8. 一般式（1）のAr₁が前記一般式（3）～（5）の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基で表されることを特徴とする前記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0019】9. 前記一般式（6）で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0020】10. 一般式（6）のAr₃が前記一般式（8）～（10）の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基を表することを特徴とする前記9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0021】11. 前記一般式（11）で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0022】12. 前記一般式(13)で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0023】13. 前記有機エレクトロルミネッセンス素子は、CIE色度座標の紫青、青紫又は紫の領域で発光することを特徴とする前記1~6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0024】14. 電子が流入する陰極と、前記陰極と隣接する有機化合物からなる電子輸送層と、正孔が流入する陽極と、前記陽極と隣接する有機化合物からなる正孔輸送層とを有し、前記有機化合物が、前記電子輸送層と前記正孔輸送層の間に挟持される発光層を構成することを特徴とする前記1~6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0025】15. 電子が流入する陰極と、前記陰極と隣接する有機化合物からなる電子輸送層と、正孔が流入する陽極と、電子と正孔が再結合して発光する発光層と、前記陽極と隣接する有機化合物からなる正孔輸送層とを有し、前記有機化合物は、前記陰極と前記発光層の間に挟持される電子輸送層に含有されることを特徴とする前記1~6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0026】16. 電子が流入する陰極と、前記陰極と隣接する有機化合物からなる電子輸送層と、正孔が流入する陽極と、電子と正孔が再結合して発光する発光層と、前記陽極と隣接する有機化合物からなる正孔輸送層とを有し、前記有機化合物は、前記発光層と前記電子輸送層の間に挟持される正孔ブロック層に含有されることを特徴とする前記1~6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0027】17. 前記陰極と前記電子輸送層の間に、バッファー層を有することを特徴とする前記13に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0028】18. 蛍光性化合物と燐光性化合物の両方を含有する発光層をもつ有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記螢光性化合物が前記一般式(1)で表される化合物を含有し、かつ、素子となった状態での電界発光によって得られる発光波長は、前記螢光性化合物の螢光極大波長よりも長波であ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。

【0029】19. 一般式(1)のAr₁が前記一般式(3)~(5)の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基で表されることを特徴とする前記18に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0030】20. 蛍光性化合物と燐光性化合物の両方を含有する発光層をもつ有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記螢光性化合物が前記一般式(6)で表される化合物を含有し、かつ、素子となった状態での電界発光によって得られる発光波長は、前記螢光性化合物の螢光極大波長よりも長波であ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。

【0031】21. 一般式(6)のAr₃が前記一般式(8)~(10)の中から選ばれるいずれかひとつの2価のアリーレン基を表すことを特徴とする前記20に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0032】22. 蛍光性化合物と燐光性化合物の両方を含有する発光層をもつ有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記螢光性化合物が前記一般式(11)で表される化合物を含有し、かつ、素子となった状態での電界発光によって得られる発光波長は、前記螢光性化合物の螢光極大波長よりも長波であ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。

【0033】23. 蛍光性化合物と燐光性化合物の両方を含有する発光層をもつ有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記螢光性化合物が前記一般式(13)で表される化合物を含有し、かつ、素子となった状態での電界発光によって得られる発光波長は、前記螢光性化合物の螢光極大波長よりも長波であ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。

【0034】24. 燐光性化合物が、重金属錯体系化合物であることを特徴とする前記18~23のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0035】25. 燐光性化合物が、元素の周期律表におけるVIII属の金属を中心金属とする錯体系化合物であることを特徴とする前記24に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0036】26. 燐光性化合物が、オスミウム、イリジウム、または、白金錯体系化合物であることを特徴とする前記25に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0037】27. 燐光性化合物からの発光の極大波長よりも更に長波な領域に、螢光極大波長を有する螢光性化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする前記18~26のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0038】28. 少なくとも、前記1~6、前記13~27のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を複数備えたことを特徴とする表示装置。

【0039】29. 表示装置が、発光の極大波長が異なる前記有機エレクトロルミネッセンス素子を同一基板上に2つ以上設けていることを特徴とする前記28に記載の表示装置。

【0040】30. 光を吸収し、該吸収した光と異なる極大波長に変換して発光する変換層を有し、前記変換層は、前記有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の極大波長を変換することを特徴とする前記28又は29に記載の表示装置。

【0041】本発明を更に詳しく説明する。一般式(1)、一般式(6)、一般式(11)及び一般式(13)で表される化合物は、有機EL素子に含有させる化合物として有用であることはもちろんのこと、他にも蚩

光発光を利用した医薬品用の標識化合物等の材料としても用いることができる。

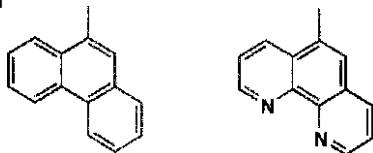
【0042】以下に、本発明の一般式(1)、一般式(6)、一般式(11)及び一般式(13)で表される化合物について更に詳しく説明する。

【0043】一般式(1)において、R₁～R₄各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基(シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)又はハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つの基を表し、Ar₁は2価の芳香族炭化水素基を表し、好ましくは一般式(3)、一般式(4)、一般式(5)のうちいずれか1つの基を表す。Ar₂は一般式(2)で表されるアリール基を表す。

【0044】一般式(2)においてR₅は水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子のうちいずれか一つの基を表し、R₆～R₈各々は、水素原子または置換基を表し、置換基は、ハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)、アルキル基(メチル、エチル、i-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、t-ブチル等)、シクロアルキル基(シクロペンチル、シクロヘキシル等)、アラルキル基(ベンジル、2-フェネチル等)、アリール基(フェニル、ナフチル、p-トリル、p-クロロフェニル等)、アルコキシ基(メトキシ、エトキシ、i-プロポキシ、ブトキシ等)、アリールオキシ基(フェノキシ等)、シアノ基、複素環基(ピロール、ピロリジル、ピラゾリル、イミダゾリル、ピリジル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、ベンゾオキサゾリル等)のうちいずれか1つの基が選ばれ、これらの基は更に置換されてもよい。また、R₅とR₆、R₆とR₇、R₇とR₈、R₈とR₉の置換基は互いに結合して環を形成してもよく、ベンゼン環とともに環を形成してもよい。(例えば、下記化11で示す、9-フェナントリル基、9-フェナントロリル基の如く。)

【0045】

【化11】



【0046】一般式(3)、一般式(4)、一般式(5)において、R₁₀～R₂₅各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル

基(シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、置換又は無置換のアリール基(フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、フェナントリル基、アントリル基等)、ハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つの基を表す。

【0047】一般式(6)において、R₂₆～R₂₉各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基(シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)又はハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つの基を表し、Ar₃は2価の芳香族炭化水素基を表し、好ましくは一般式(8)、一般式(9)、一般式(10)のうちいずれか1つの2価のアリーレン基を表し、Ar₄は一般式(7)で表されるアリール基を表す。

【0048】一般式(7)においてR₃₄は水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子のうちいずれか一つを表し、R₃₀～R₃₃各々は、水素原子または置換基を表し、置換基としては、ハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)、アルキル基(メチル、エチル、i-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、t-ブチル等)、シクロアルキル基(シクロペンチル、シクロヘキシル等)、アラルキル基(ベンジル、2-フェネチル等)、アリール基(フェニル、ナフチル、p-トリル、p-クロロフェニル等)、アルコキシ基(メトキシ、エトキシ、i-プロポキシ、ブトキシ等)、アリールオキシ基(フェノキシ等)、シアノ基、複素環基(ピロール、ピロリジル、ピラゾリル、イミダゾリル、ピリジル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、ベンゾオキサゾリル等)のうちいずれか1つの基で、これらの基は更に置換されてもよい。また、R₃₀とR₃₁、R₃₁とR₃₂、R₃₂とR₃₃、R₃₃とR₃₄の置換基は互いに結合して環を形成してもよく、ベンゼン環とともに縮合環を形成してもよい。

【0049】一般式(8)、一般式(9)、一般式(10)においてR₃₅～R₅₀各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基(シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、置換又は無置換のアリール基(フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、フェナントリル基、アントリル基等)又はハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つの基

を表す。

【0050】一般式(11)において、 $R_{82} \sim R_{85}$ 各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基(シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、又はハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つの基を表し、 X_2 は一般式(14)で表されるアリール基を表す。一般式(12)において、 R_{86} はアルキル基(メチル、エチル、i-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、t-ブチル等)、アルコキシ基(メトキシ、エトキシ、i-プロポキシ、ブトキシ等)、ハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つの置換基を表し、好ましくはメチル基、トリフルオロメチル基、弗素原子を表す。 $R_{87} \sim R_{89}$ は各々、水素原子、置換又は無置換のアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基(シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、置換又は無置換のアリール基(フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、フェナ NSRIL基、アントリル基等)又はハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つを表す。 A_r は芳香族炭化水素基を表し、芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、フェナ NSRIL基、アントリル基等が挙げられ、それらは更に置換基を有していてもよく、それらの置換基のうち隣接する置換基は互いに結合して環を形成しても良い。好ましくは1-ナフチル基、9-フェナ NSRIL基を表す。一般式(13)において、 $R_{90} \sim R_{93}$ 各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキ

シメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基(シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、又はハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つの基を表し、 X_2 は一般式(14)で表されるアリール基を表す。一般式(14)において、 R_{94} はアルキル基(メチル、エチル、i-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、t-ブチル等)、アルコキシ基(メトキシ、エトキシ、i-プロポキシ、ブトキシ等)、ハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つの置換基を表し、好ましくはメチル基、トリフルオロメチル基、弗素原子を表す。 $R_{95} \sim R_{97}$ は各々、水素原子、置換又は無置換のアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基(シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、置換又は無置換のアリール基(フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、フェナ NSRIL基、アントリル基等)又はハロゲン原子(弗素原子、塩素原子等)のうちいずれか1つを表す。 A_r は芳香族炭化水素基を表し、芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、フェナ NSRIL基、アントリル基等が挙げられ、それらは更に置換基を有していてもよく、それらの置換基のうち隣接する置換基は互いに結合して環を形成していても良い。好ましくは1-ナフチル基、9-フェナ NSRIL基を表す。

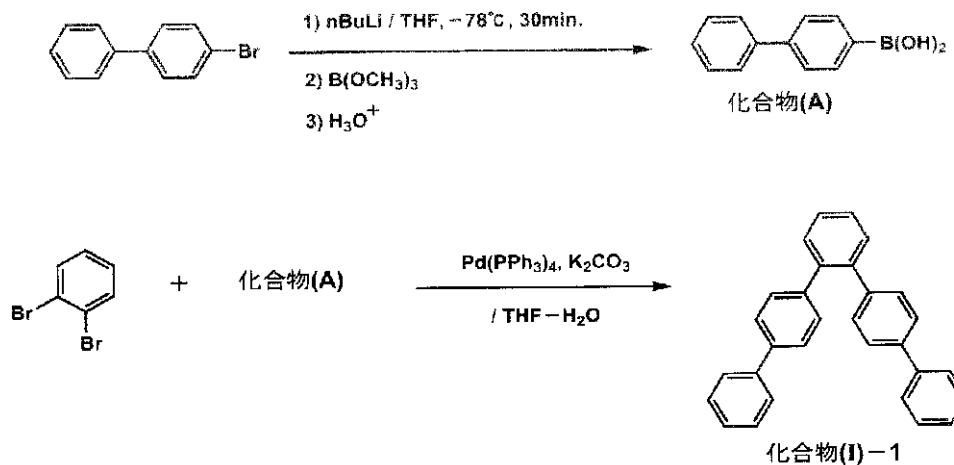
【0051】次に本発明の一般式(1)、(6)、(11)及び(13)で表される化合物の代表的な合成例を述べる。

【0052】【合成例-1】 化合物(I)-1の合成

【0053】

【化12】

合成例-1



【0054】4 - ブロモビフェニル 13.3 g を窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン 150 ml に溶解し、-78 ℃ で n - ブチルリチウム - ヘキサン (1.5 M / L) 溶液を 57.1 ml 滴下し、30 分攪拌後、トリメトキシボラン 12.8 ml のテトラヒドロフラン 50 ml 溶液を滴下した後、反応溶液に酸を加え、pH = 2 にした。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物(A)を 8.62 g (収率 76%) 得た。

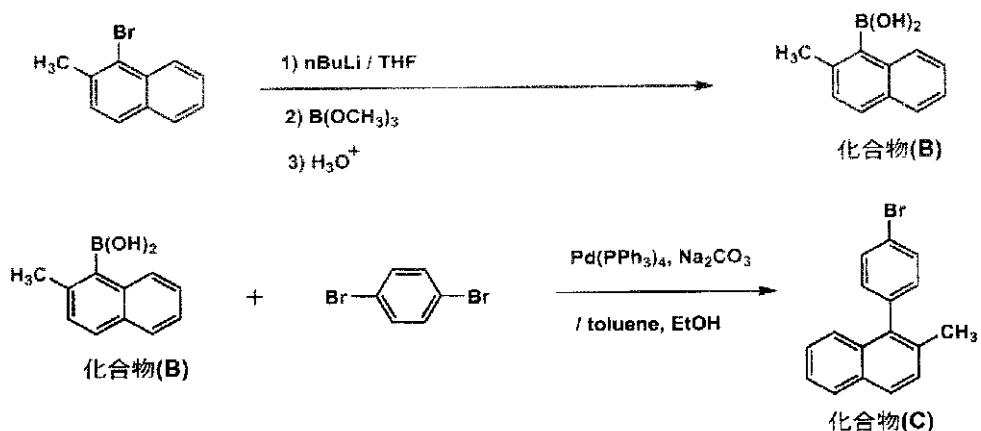
【0055】次に化合物(A) 3.44 g と 1.2 - ジ*

* ブロモベンゼン 1.86 g をテトラヒドロフラン - 水 2 層系の溶媒中、炭酸カリウム 2.18 g、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム 910 mg の存在下、20 時間還流することで、化合物(I)-1 を 1.96 g (収率 65%) 得た。

【0056】【合成例-2】 化合物(II)-32 の合成

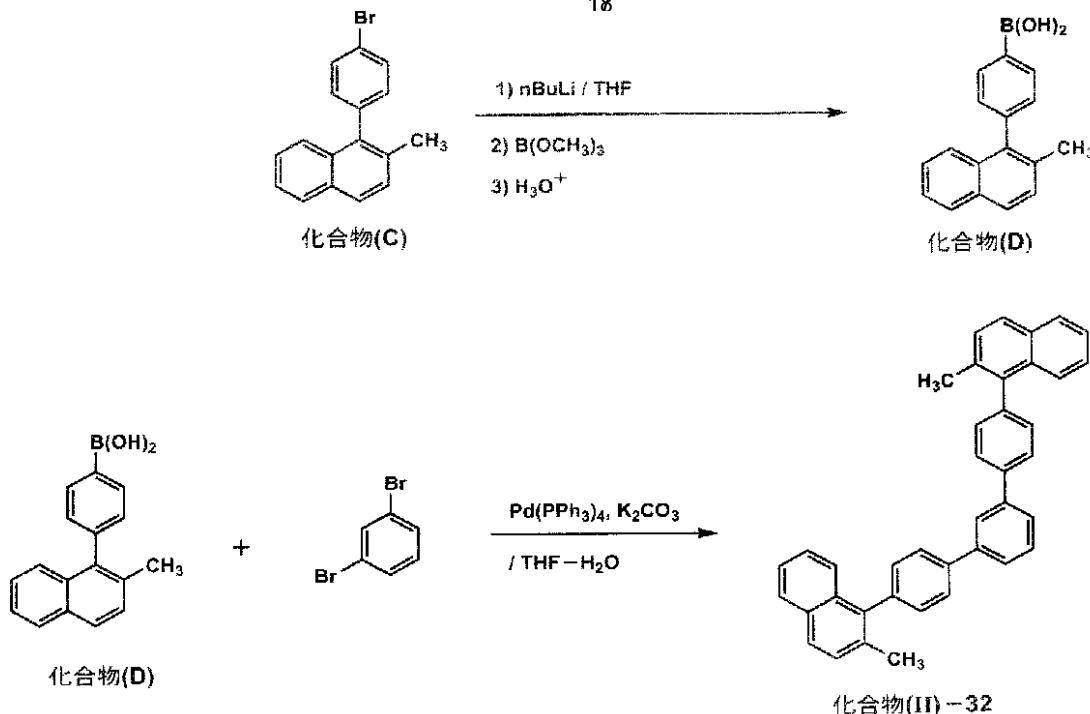
【0057】

【化13】



【0058】

【化14】



【0059】1-ブロモ-2-メチルナフタレン2.0gを窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン100mlに溶解し、-78でn-ブチルリチウム-ヘキサン(1.5M/L)溶液を90.5ml滴下し、30分攪拌後、トリメトキシボラン23.2mlのテトラヒドロフラン100ml溶液を滴下した後、反応溶液に酸を加え、pH=2にした。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物(B)を9.41g(収率56%)を得た。

【0060】化合物(B)4.69gと1,4-ジブロモベンゼン11.9gをトルエン60mlとエタノール10mlの混合溶媒に加え、そこにテトラキストリフェニルホスフィンパラジウム300mgと2M/Lの炭酸ナトリウム水溶液25mlを添加し、18時間還流した。その後、抽出、乾燥、カラムクロマトグラフィーで精製、再結晶することで、化合物(C)を6.60g(収率88%)を得た。

【0061】次に化合物(C)6.37gを窒素雰囲気

下脱水テトラヒドロフラン50mlに溶解し、-78でn-ブチルリチウム-ヘキサン(1.5M/L)溶液を21.4ml滴下し、30分攪拌後、トリメトキシボラン5.50mlのテトラヒドロフラン20ml溶液を滴下した後、反応溶液に酸を加え、pH=2にした。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物(D)を3.93g(収率70%)を得た。

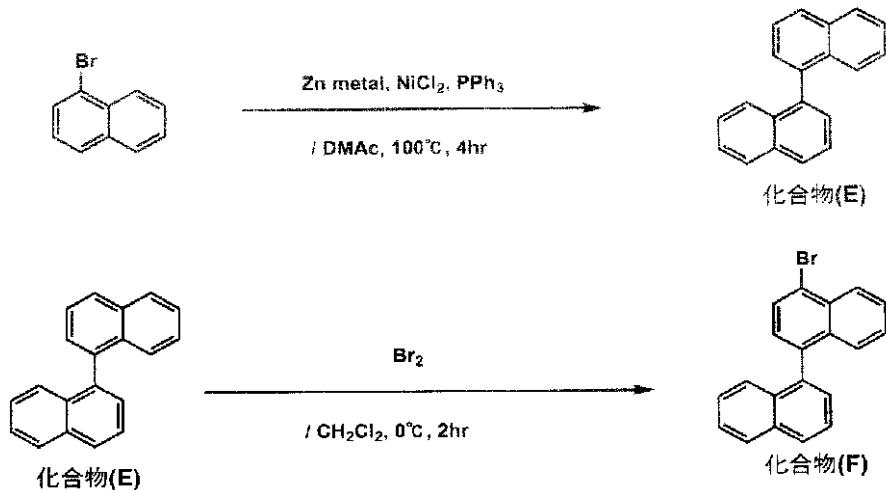
【0062】化合物(D)3.14gと1,3-ジブロモベンゼン1.28gをテトラヒドロフラン-水2層系の溶媒中、炭酸カリウム3.31g、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム629mgの存在下、20時間還流することで化合物(II)-32を1.50g(収率54%)を得た。

【0063】【合成例-3】化合物(II)-39の合成

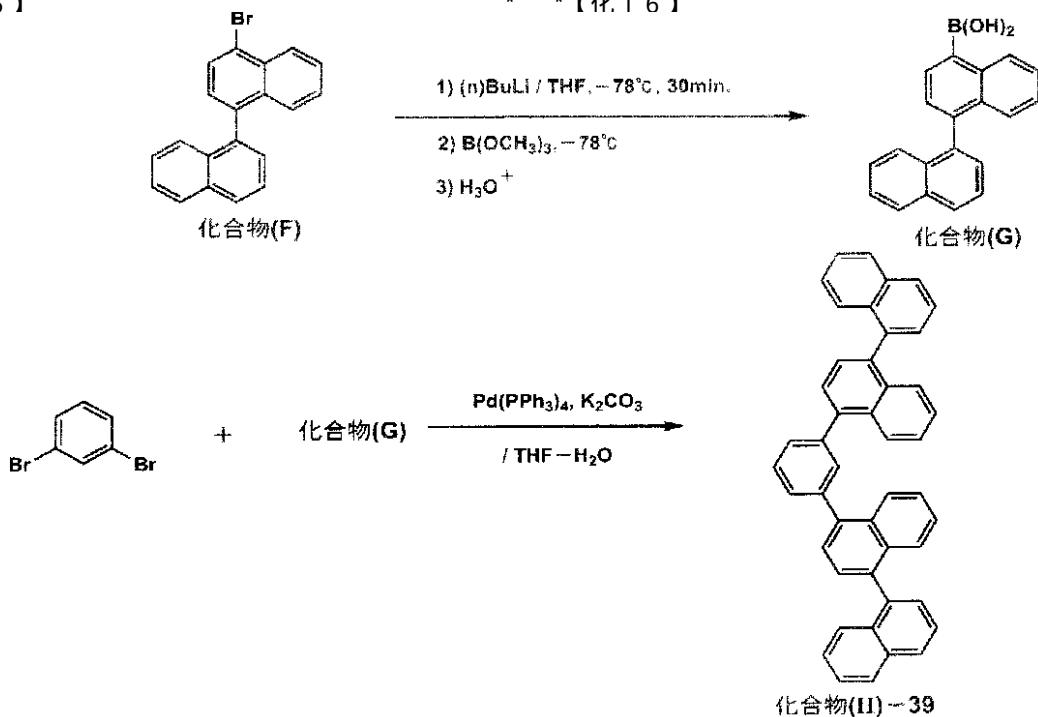
【0064】

【化15】

合成例-3



【0065】



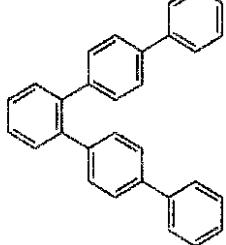
【0066】トリフェニルホスフィン 31.0 g、塩化ニッケル 7.65 g 及び金属亜鉛 19.3 g を窒素雰囲気下脱水ジメチルアセトン 100 ml に加えて攪拌下加熱し、100度で 1-ブロモナフチル 61.1 g を 50 ml の脱水ジメチルアセトンに溶かした溶液を滴下した。続いて4時間 100度で加熱攪拌し、反応液を中和、抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで、化合物(E)を 8.4 g (56%) 得た。

【0067】次に化合物(E) 7.0 g を塩化メチレン 80.0 ml に溶かし、氷冷し、0度で臭素 43.9 g を塩化メチレン 100 ml に溶かした溶液を液体クロマトグラフィーで反応追跡しながら滴下した。反応液を洗浄、抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物(F)を 79.2 g (収率 86%) 得た。

【0068】化合物(F) 50 g を窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン 200 ml に溶解し、-78 度で n -ブチルリチウム-ヘキサン (1.5 M/L) 溶液を 10 ml 滴下し、30 分攪拌後、トリメトキシボラン 20 ml のテトラヒドロフラン 30 ml 溶液を滴下した後、反応溶液に酸を加え、pH = 2 にした。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物(G)を 33.8 g (収率 76%) 得た。

【0069】化合物(G) 4.47 g と 1,3-ジブロモベンゼン 1.61 g をテトラヒドロフラン-水 2 層系の溶媒中、炭酸カリウム 4.14 g、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム 790 mg の存在下、20 時間還流することで化合物(II) - 39 を 2.31 g (収率 58%) 得た。

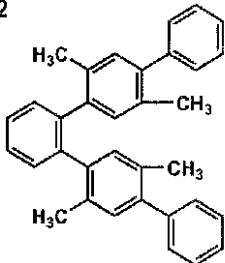
【0070】以下に、本発明における一般式(1)、(6)、(11)及び(13)で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではな
 (I)-1



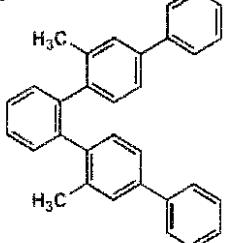
*い。

【0071】

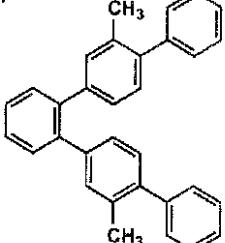
(I)-2



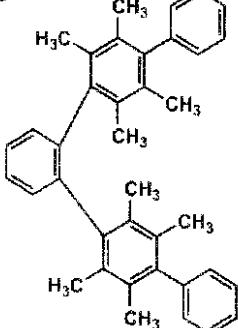
(I)-3



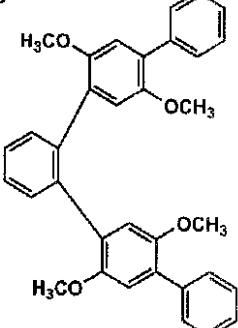
(I)-4



(I)-5



(I)-6

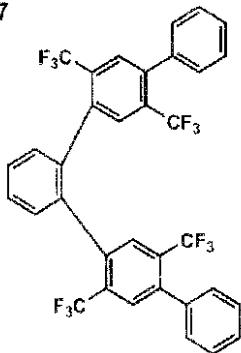


【0072】

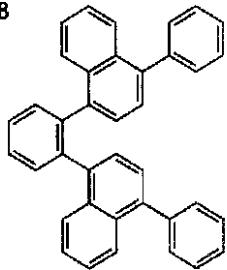
【化18】

(13)

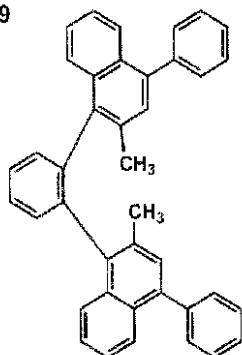
(I)-7



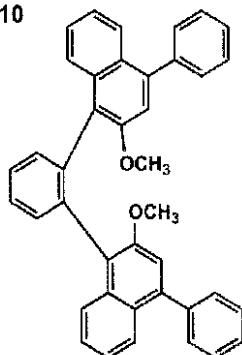
24(I)-8



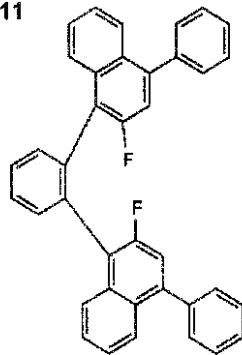
(I)-9



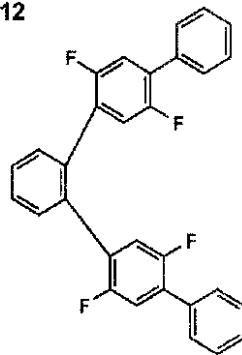
(I)-10



(I)-11



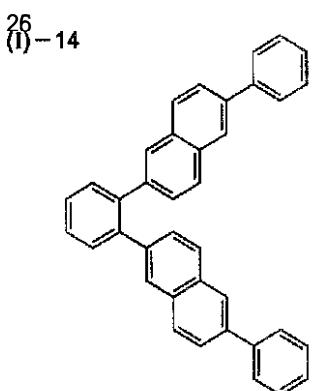
(I)-12



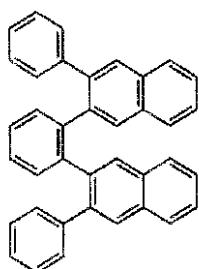
【0073】

【化19】

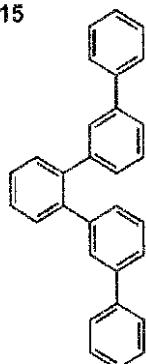
(14)



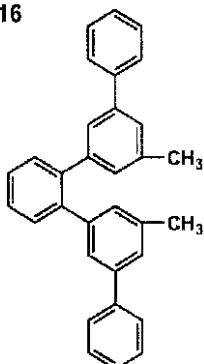
(I)-13



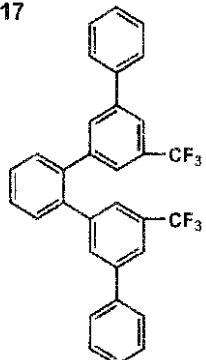
(I)-15



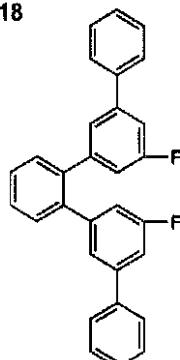
(I)-16



(I)-17



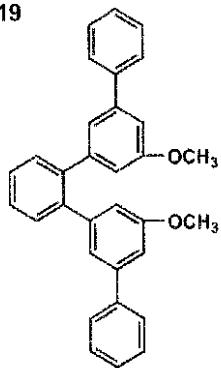
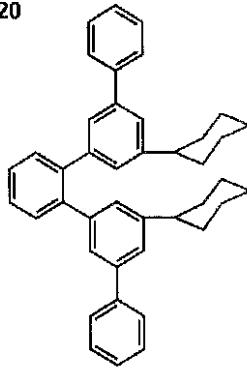
(I)-18



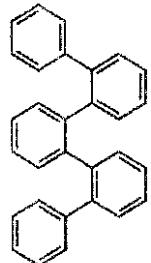
【0074】

【化20】

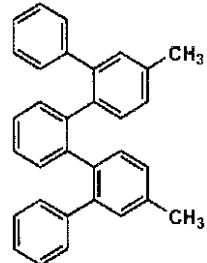
(I)-19

(I)-20²⁸

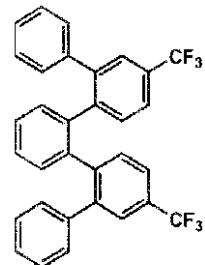
(I)-21



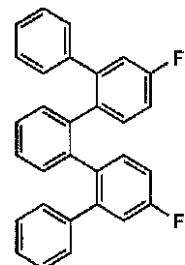
(I)-22



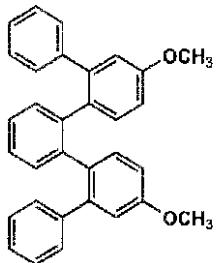
(I)-23



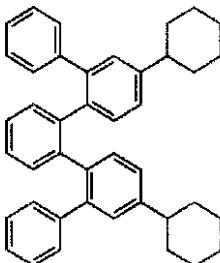
(I)-24



(I)-25



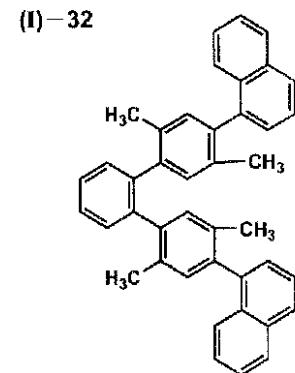
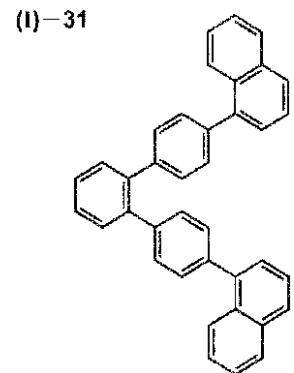
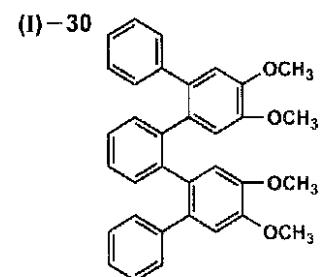
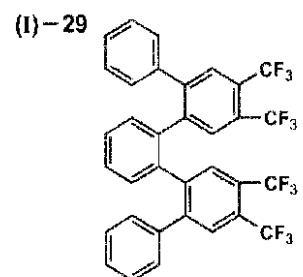
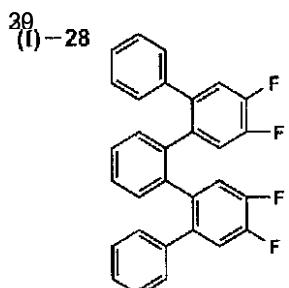
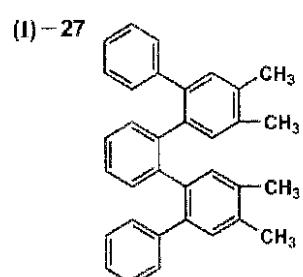
(I)-26



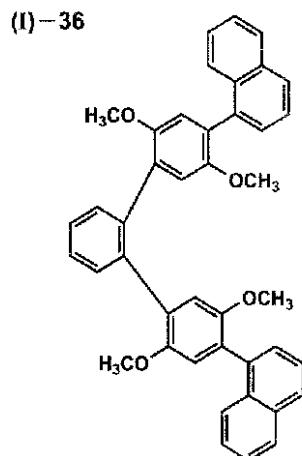
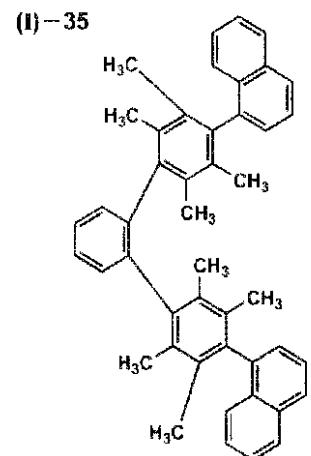
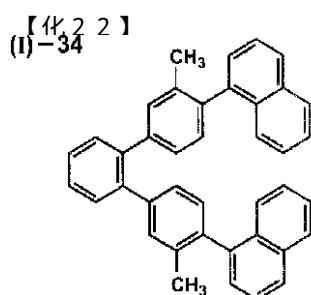
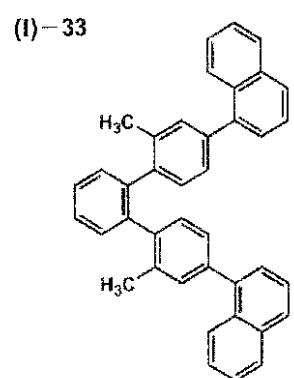
【0075】

【化21】

(16)

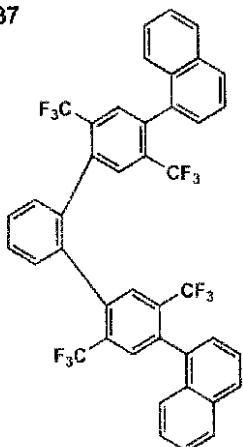


【0076】

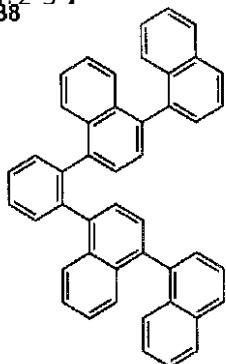


【0077】

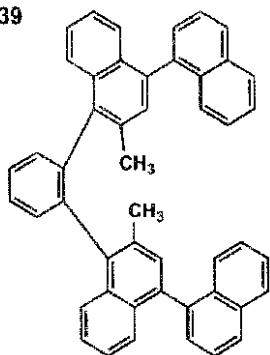
(I)-37



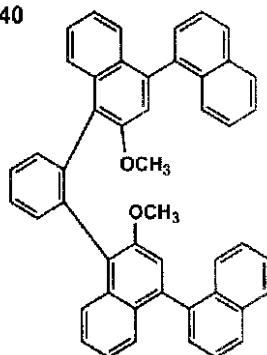
* (I)-38



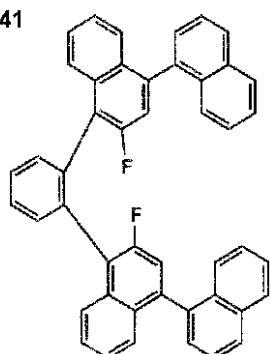
(I)-39



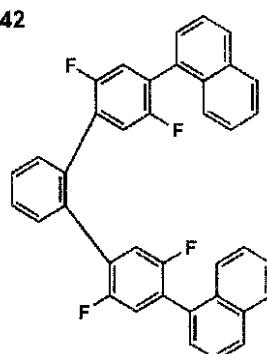
(I)-40



(I)-41

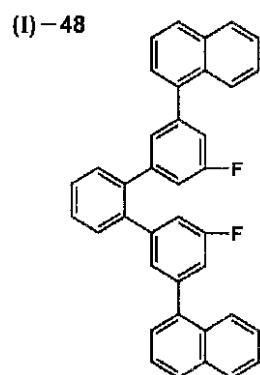
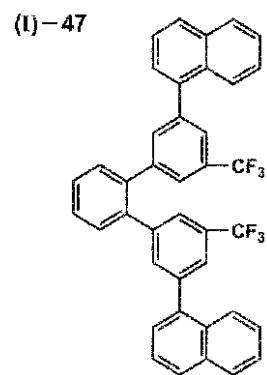
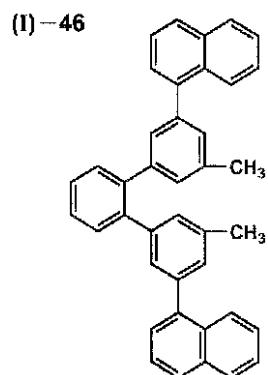
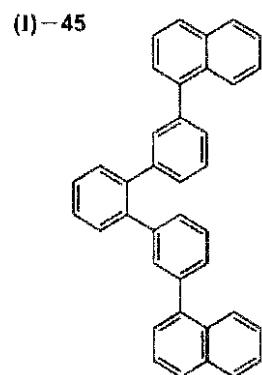
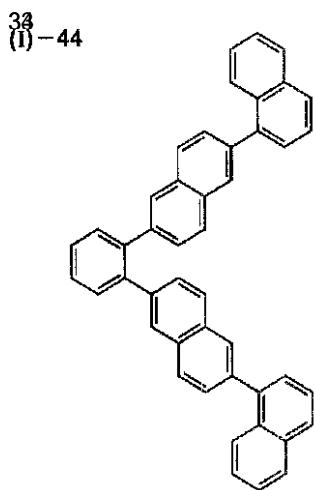
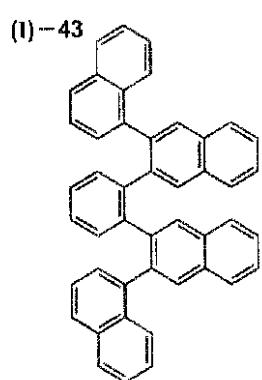


(I)-42



【0078】

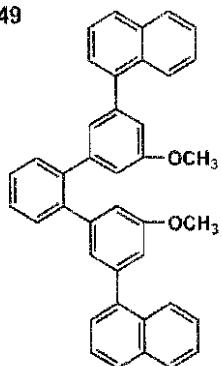
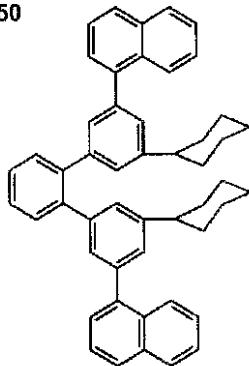
【化24】



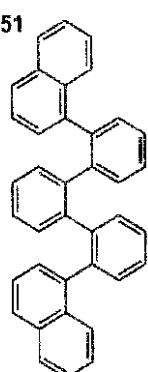
【0079】

【化25】

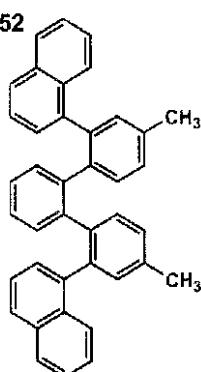
(I)-49

(I)-50³⁶

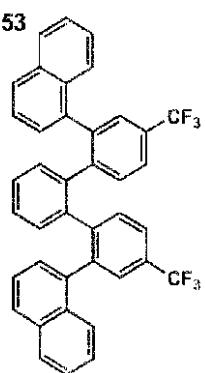
(I)-51



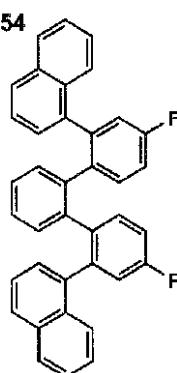
(I)-52



(I)-53

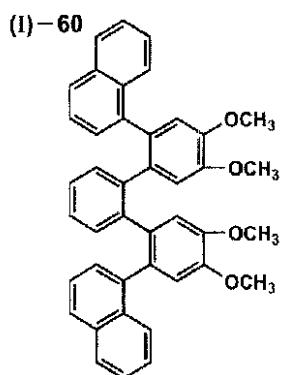
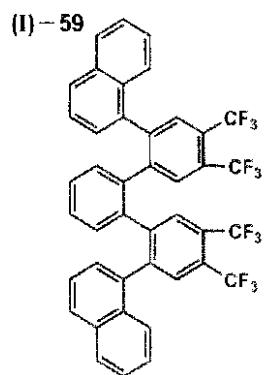
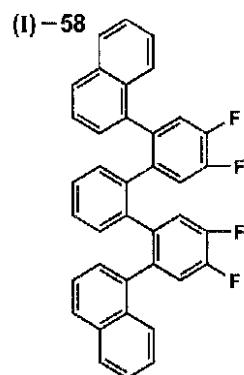
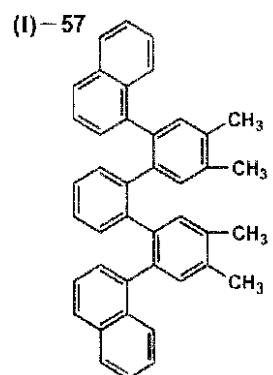
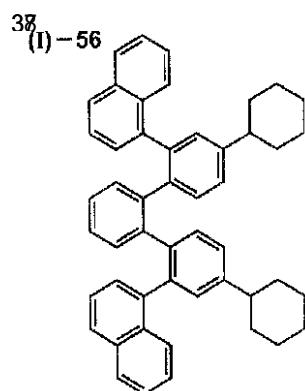
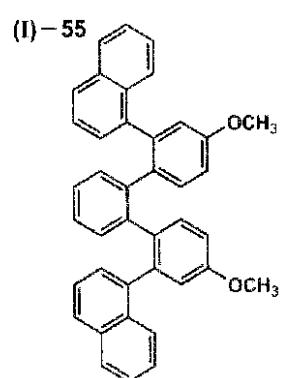


(I)-54



【0080】

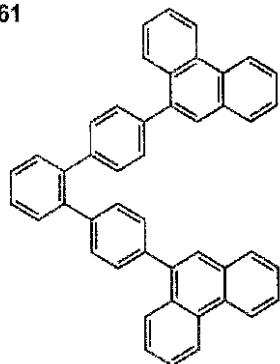
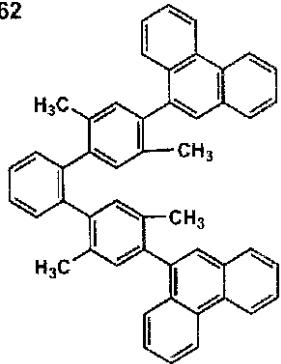
【化26】



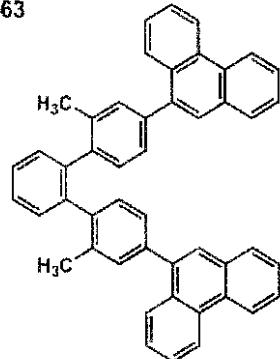
【0081】

【化27】

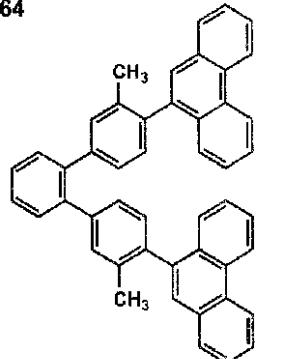
(I)-61

(I)-62⁴⁰

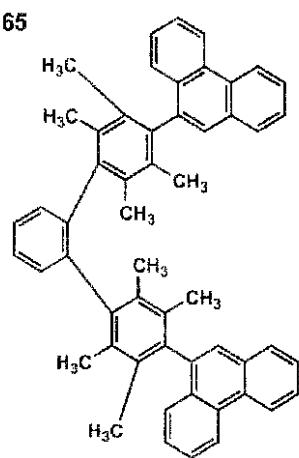
(I)-63



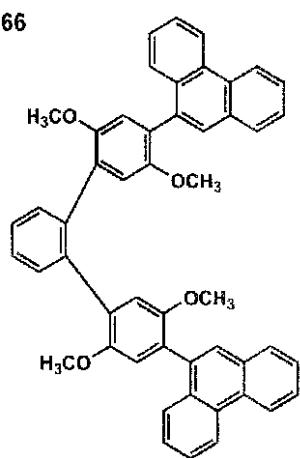
(I)-64



(I)-65



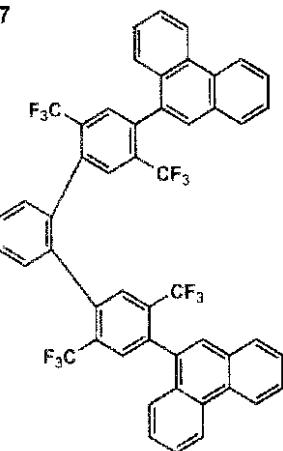
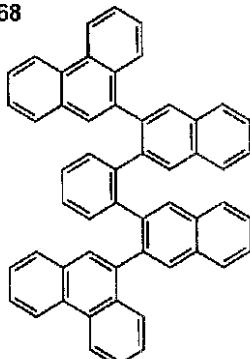
(I)-66



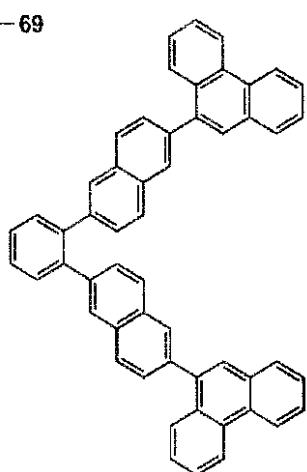
【0082】

【化28】

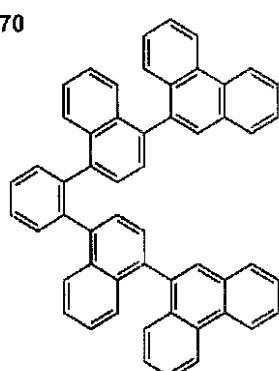
(I)-67

(I)⁴²-68

(I)-69



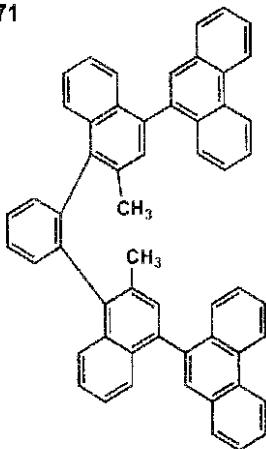
(I)-70



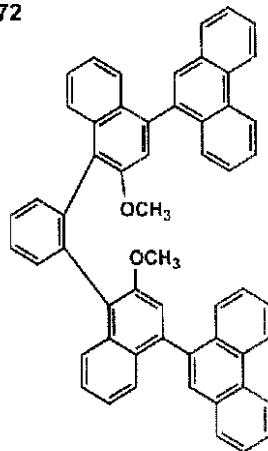
【0083】

【化29】

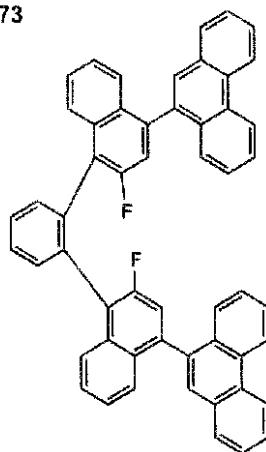
(I)-71



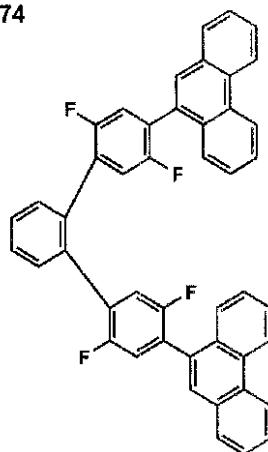
(I)-72



(I)-73



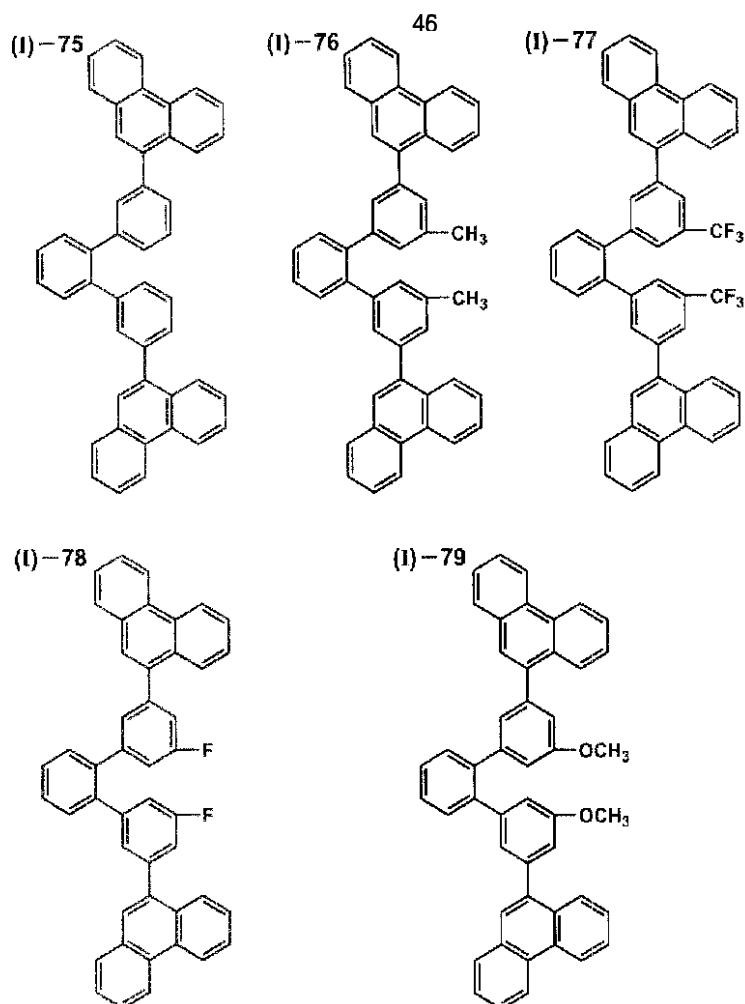
(I)-74



【0084】

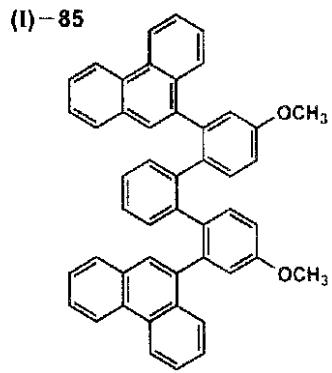
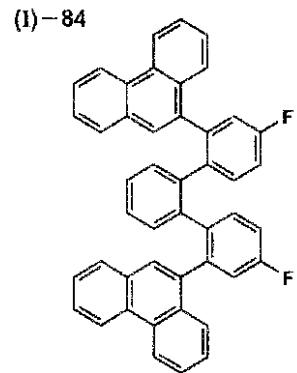
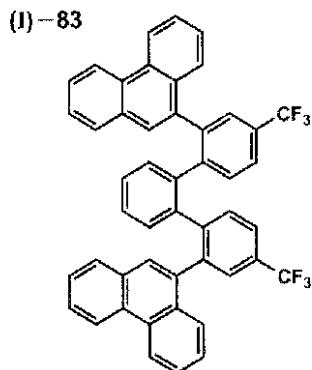
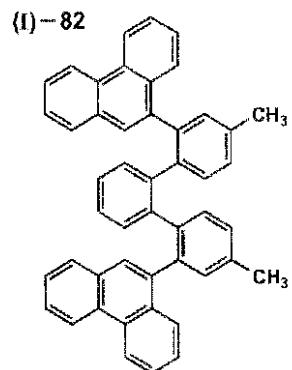
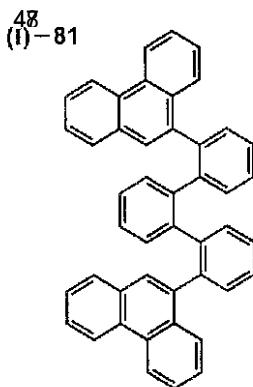
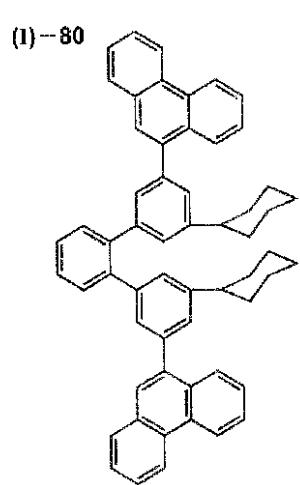
【化30】

(24)



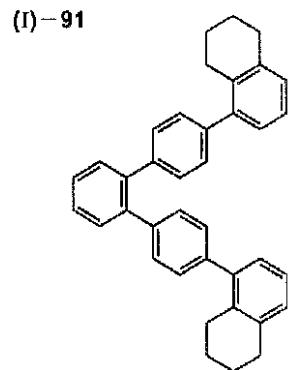
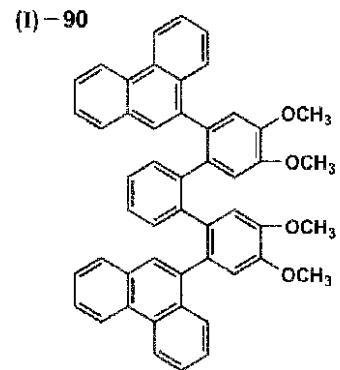
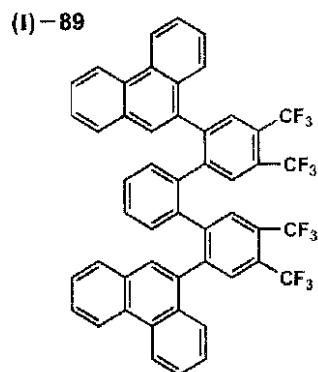
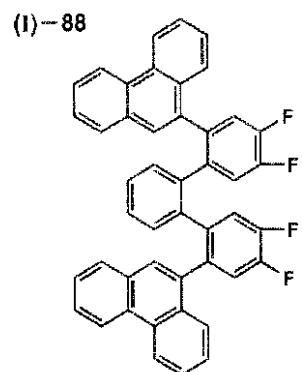
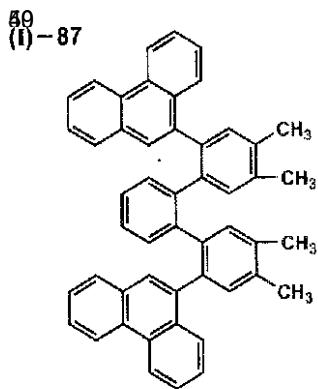
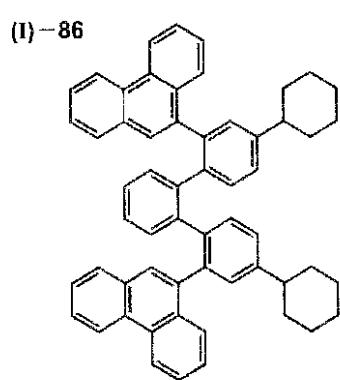
【0085】

【化31】



【0086】

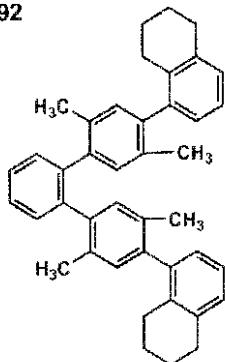
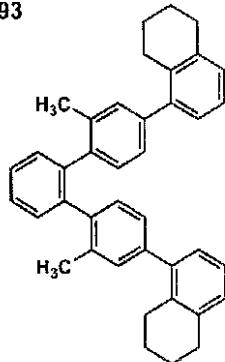
【化32】



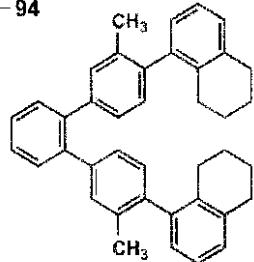
【0087】

【化33】

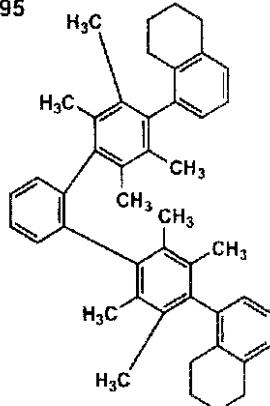
(I)-92

(I)-93⁵²

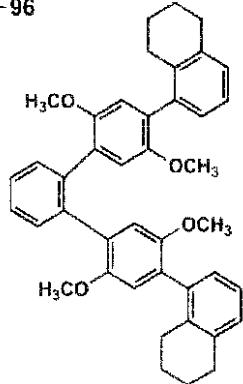
(I)-94



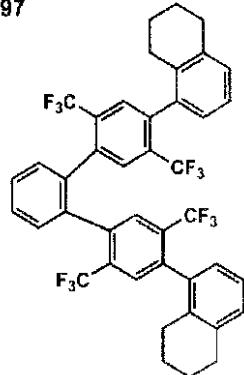
(I)-95



(I)-96

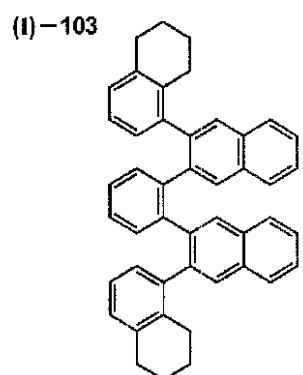
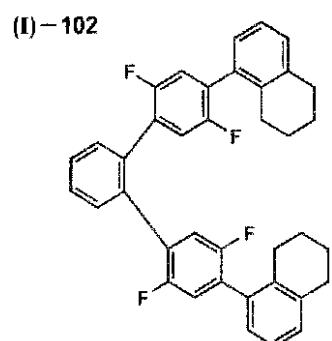
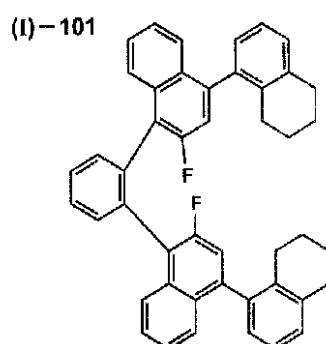
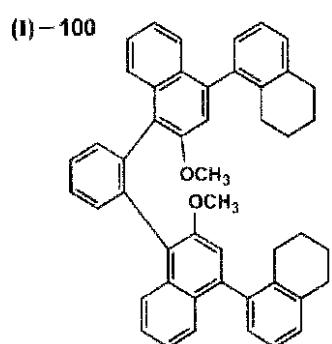
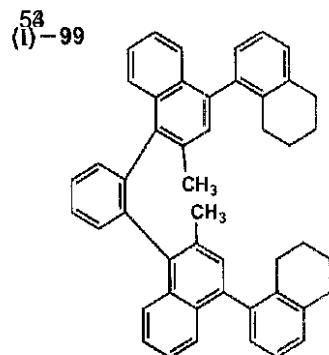
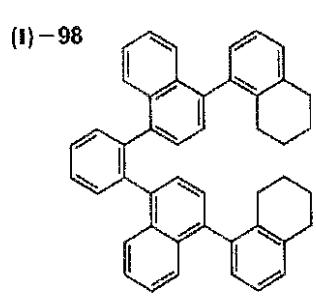


(I)-97



【0088】

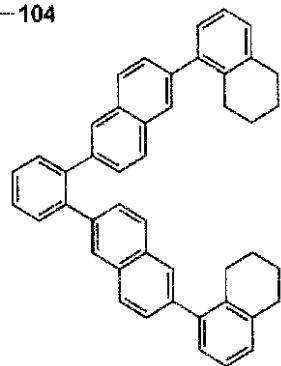
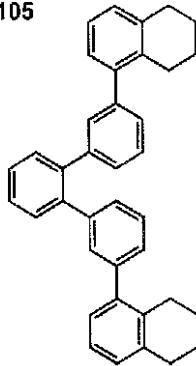
【化34】



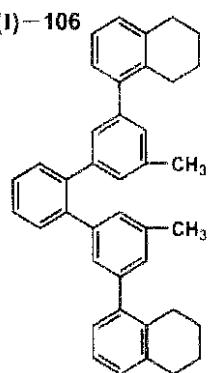
【0089】

【化35】

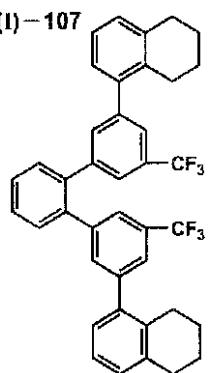
(I)-104

(I)⁵⁶-105

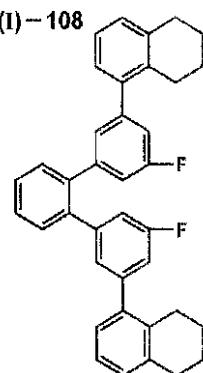
(I)-106



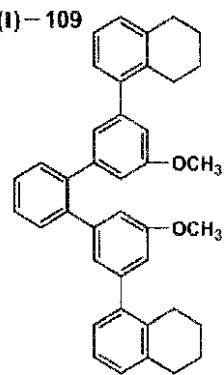
(I)-107



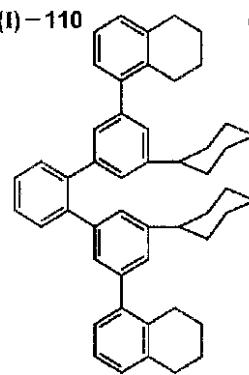
(I)-108



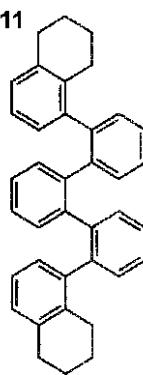
(I)-109



(I)-110

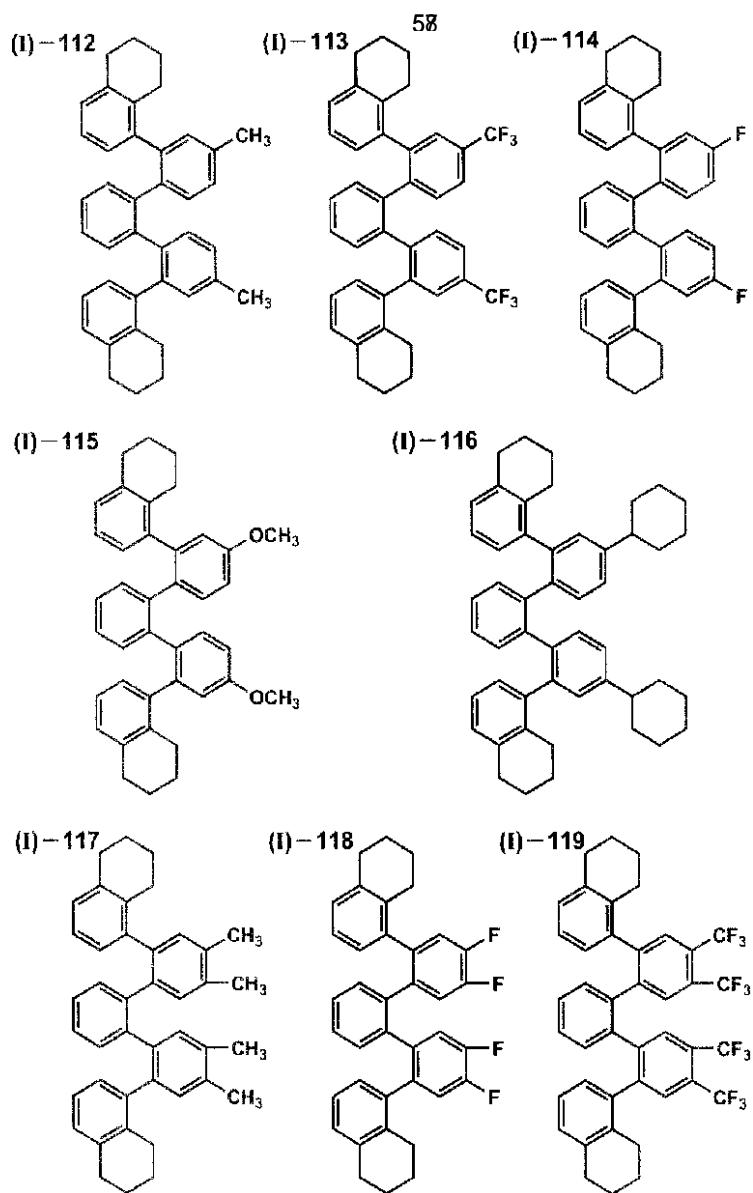


(I)-111



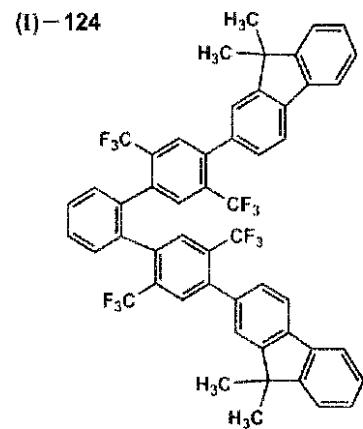
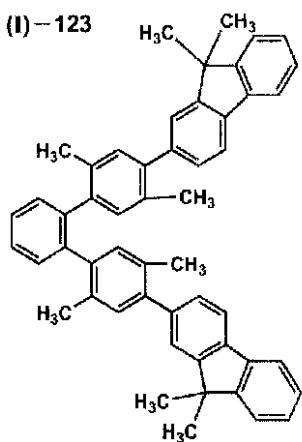
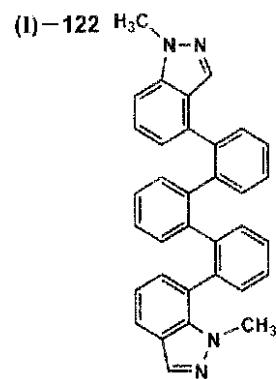
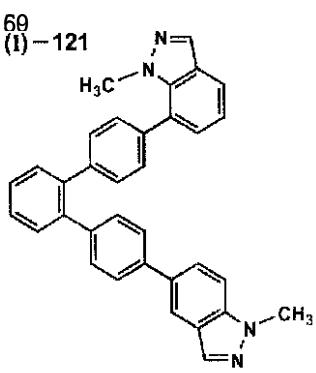
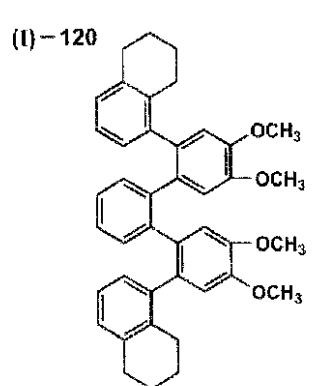
【0090】

【化36】



【 0 0 9 1 】

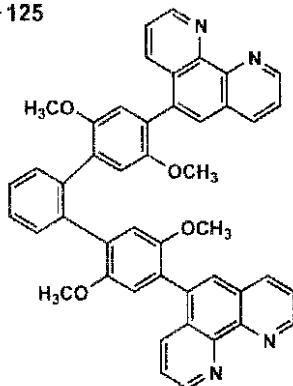
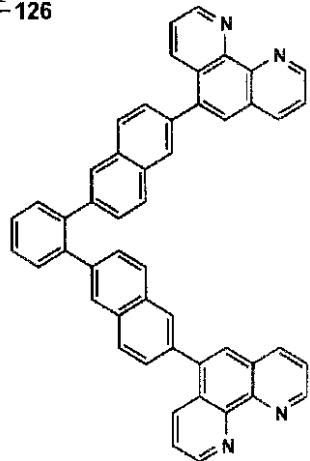
【化37】



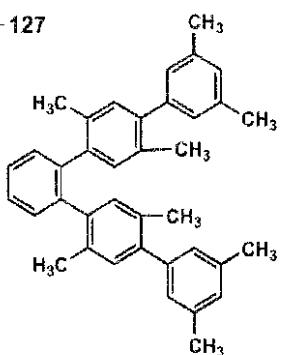
【0092】

【化38】

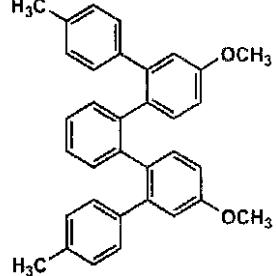
(I)-125

(I)⁶²-126

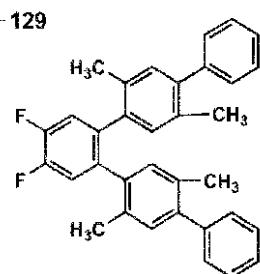
(I)-127



(I)-128



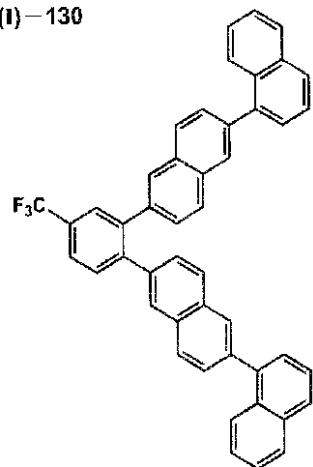
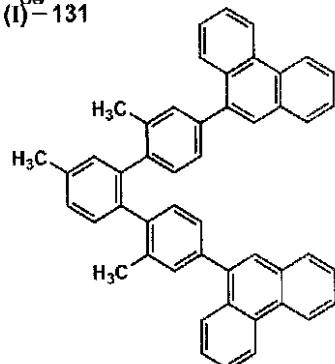
(I)-129



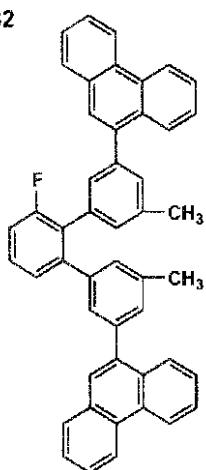
【0093】

【化39】

(I)-130

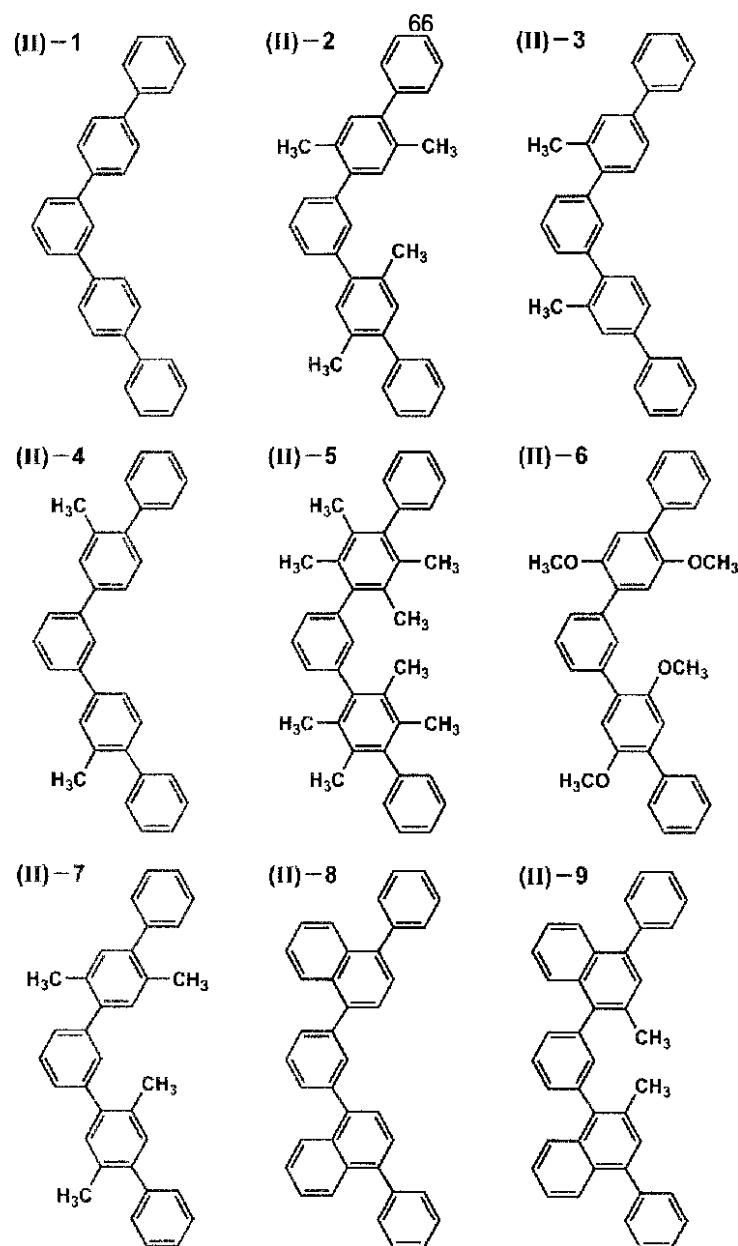
(I)⁶⁴-131

(I)-132



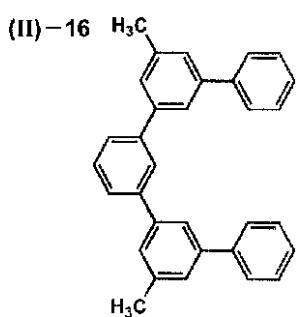
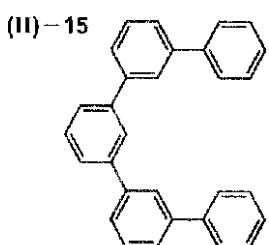
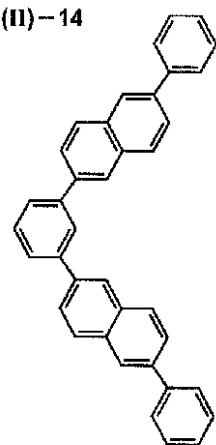
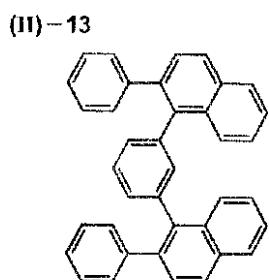
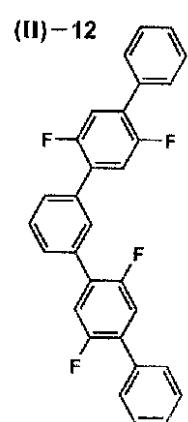
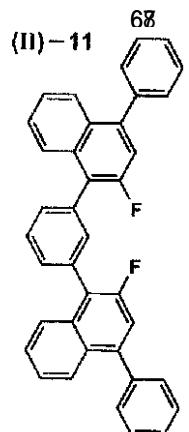
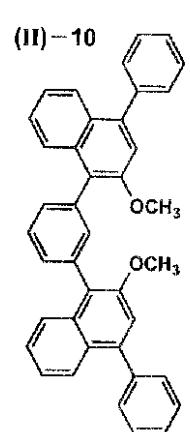
【0094】

【化40】



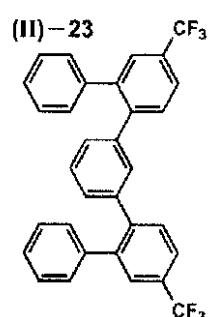
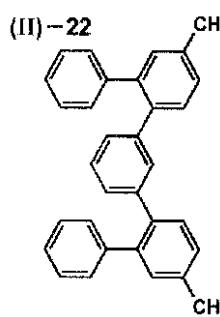
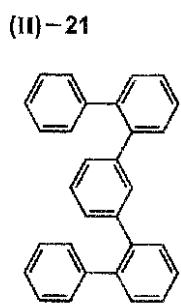
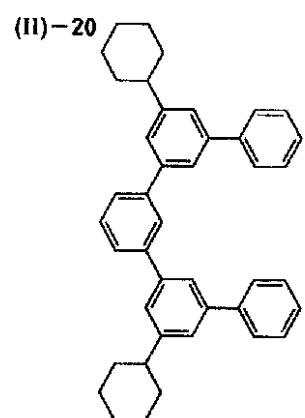
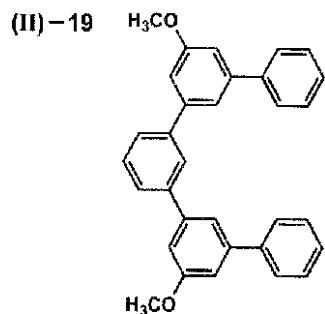
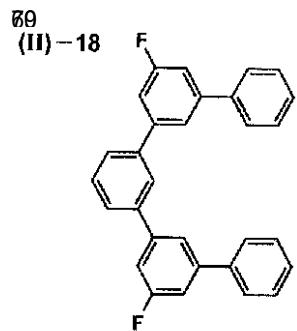
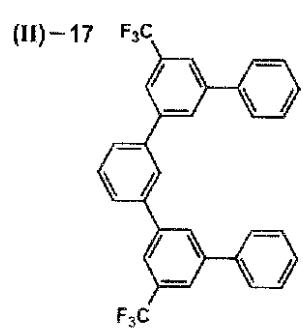
【0095】

【化41】



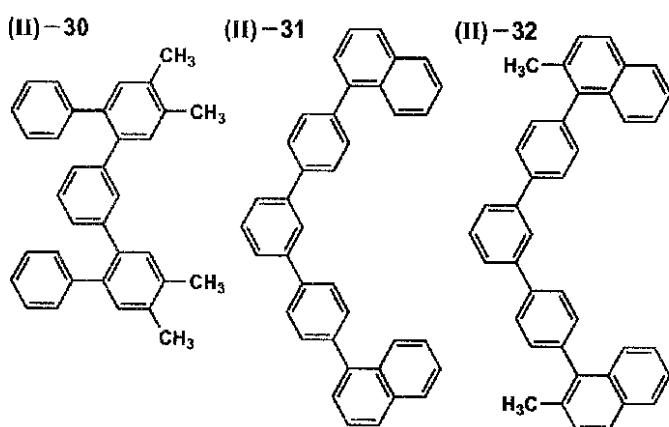
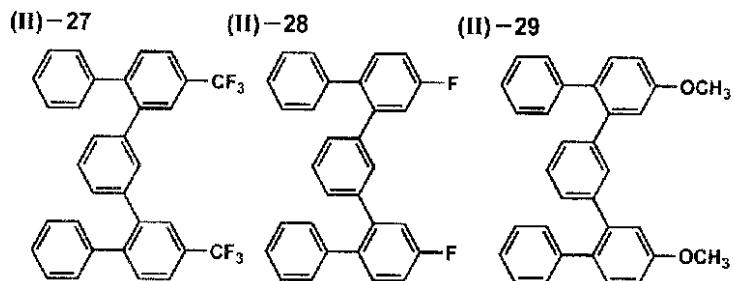
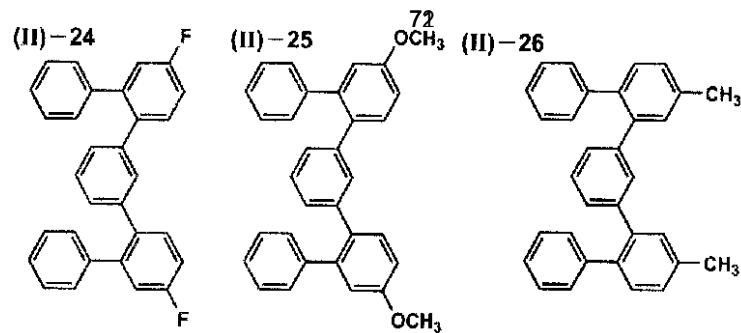
【0096】

【化42】



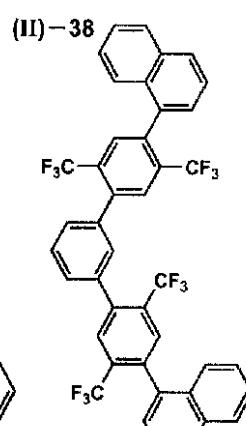
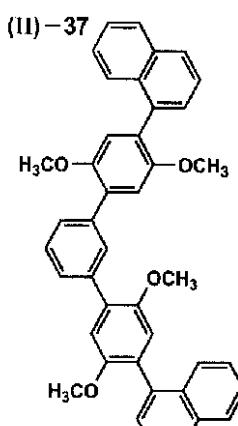
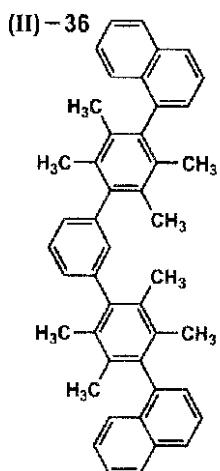
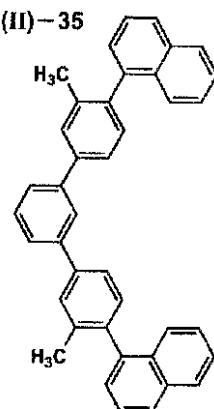
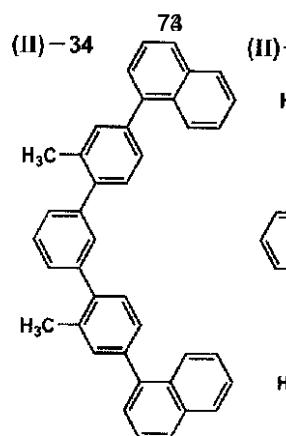
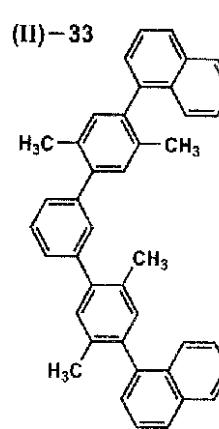
【0097】

【化43】

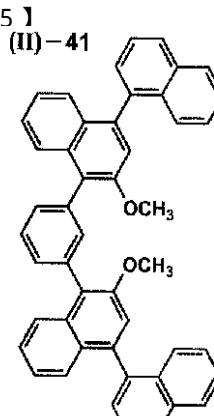
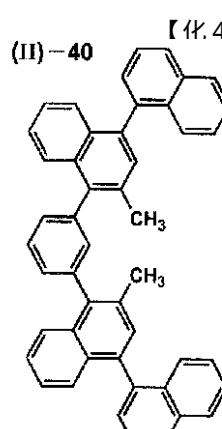
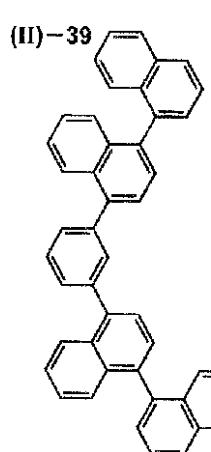


【0098】

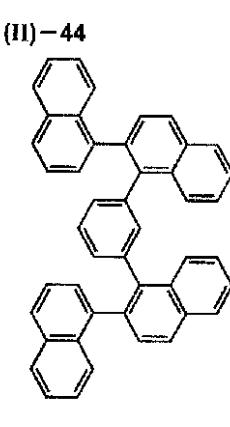
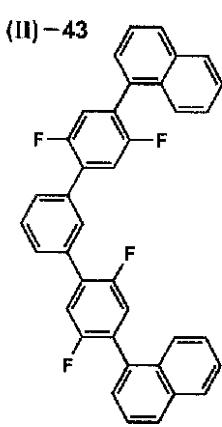
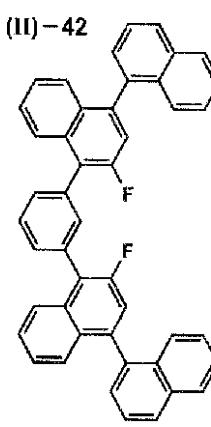
【化44】



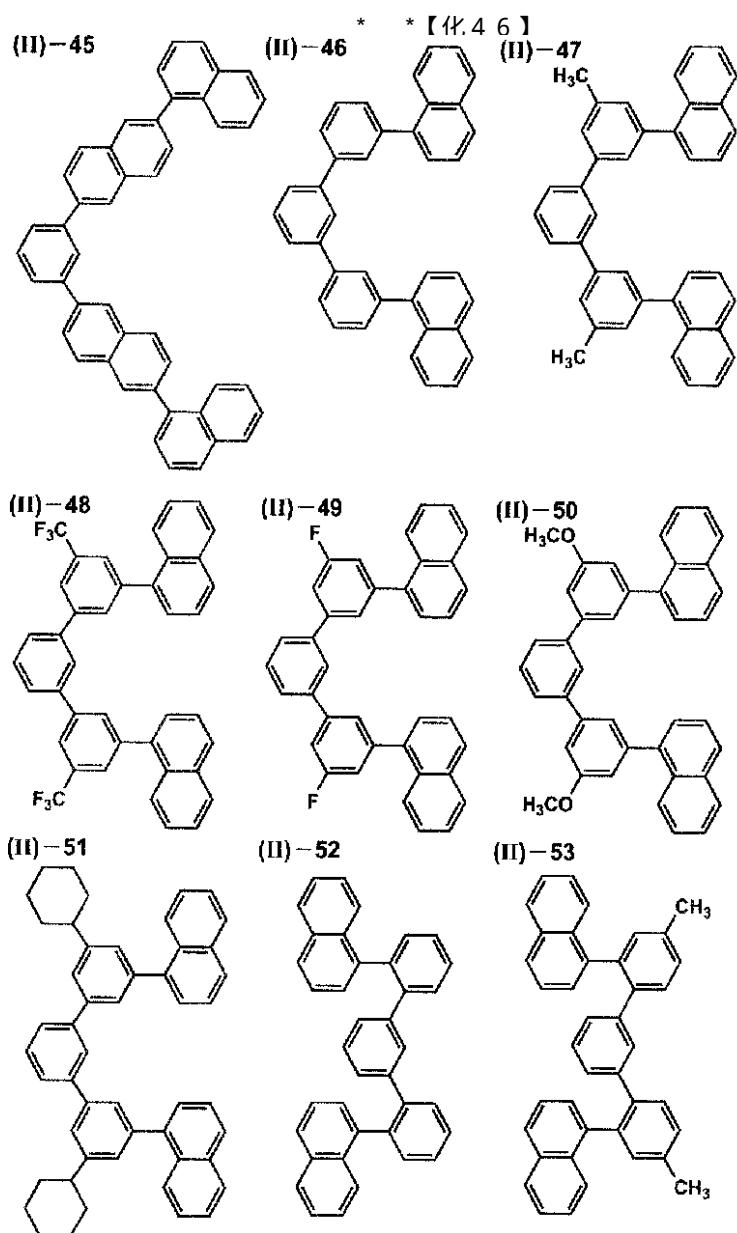
【0099】



【化45】

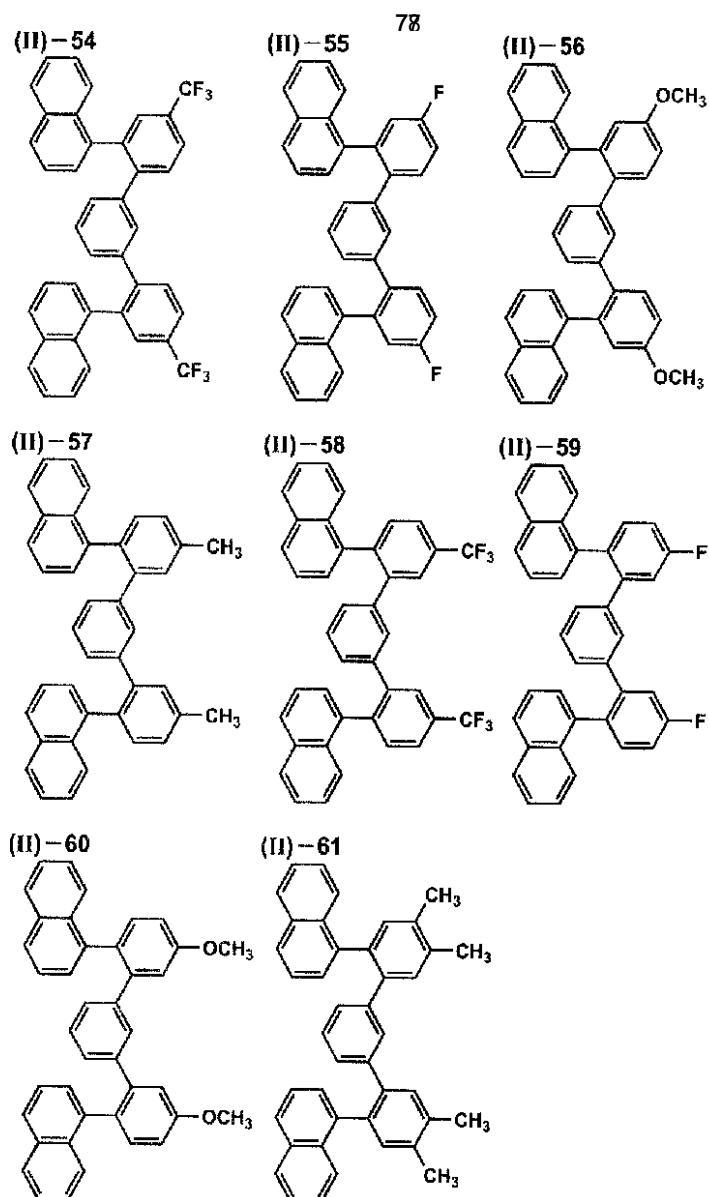


[0 1 0 0]



【0101】

【化 4 7】

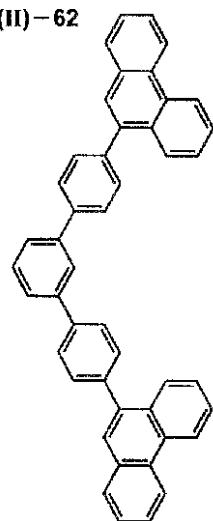


【0102】

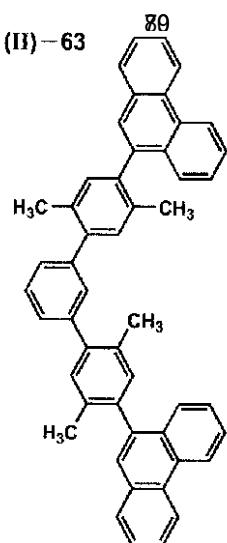
【化48】

(41)

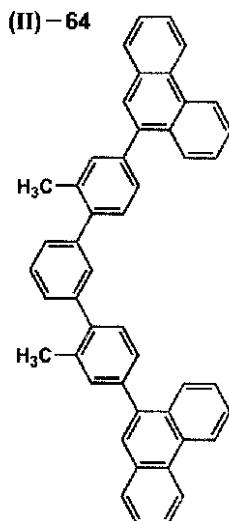
(II)-62



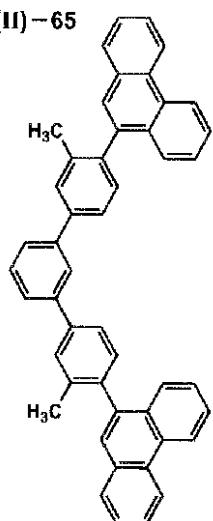
(II)-63



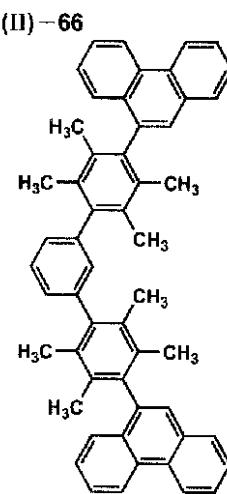
(II)-64



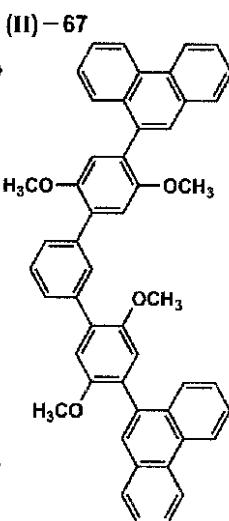
(II)-65



(II)-66

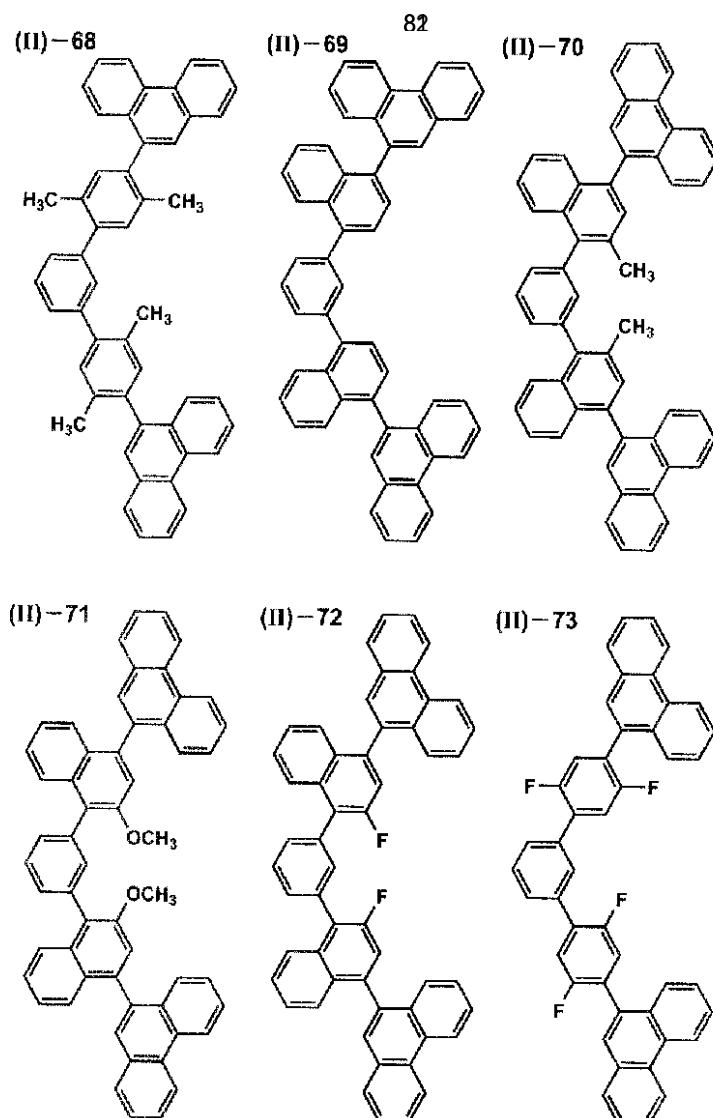


(II)-67



【0103】

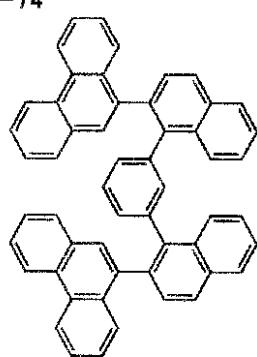
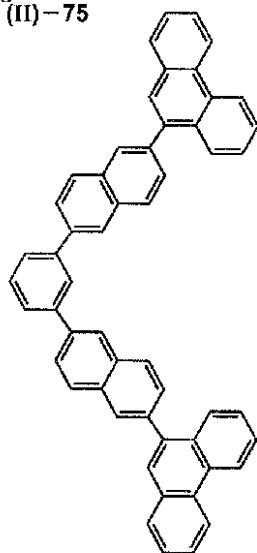
【化49】



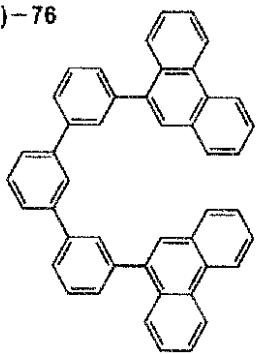
【0104】

【化50】

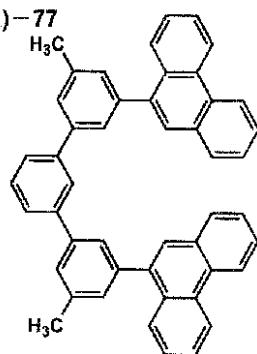
(II)-74

84
(II)-75

(II)-76

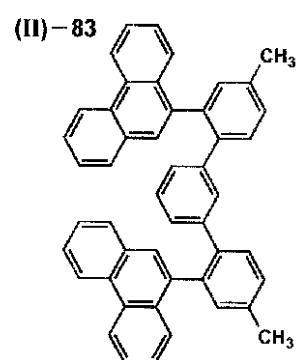
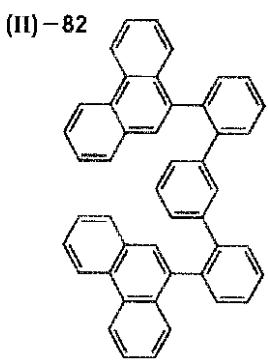
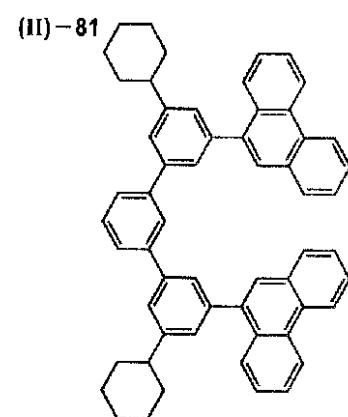
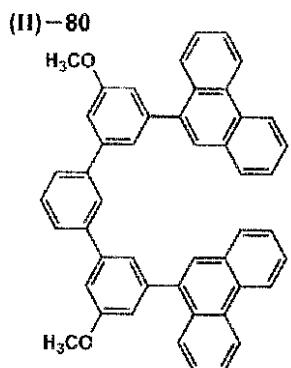
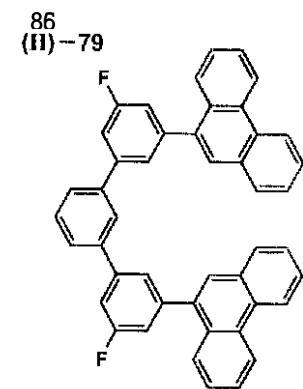
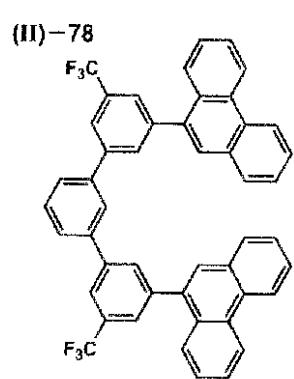


(II)-77



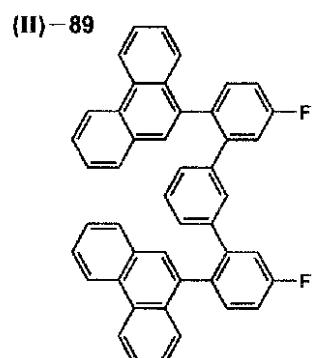
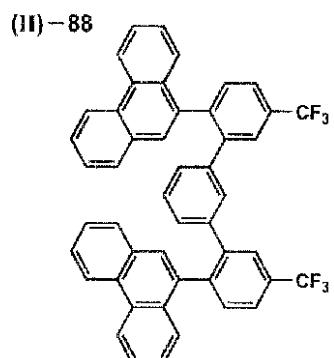
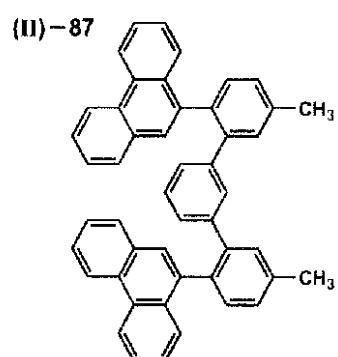
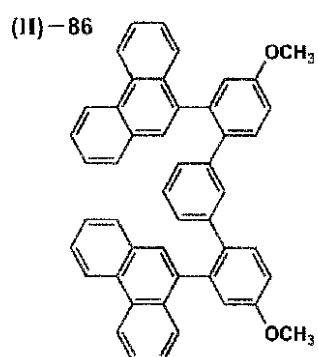
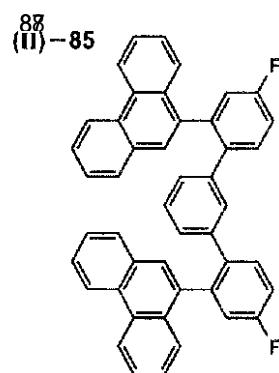
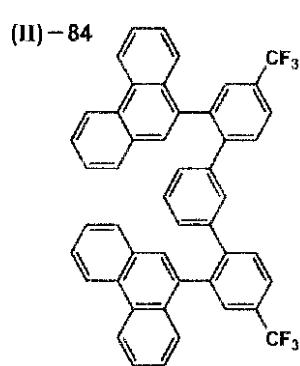
【0105】

【化51】



【0106】

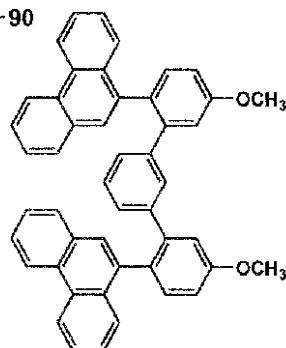
【化52】



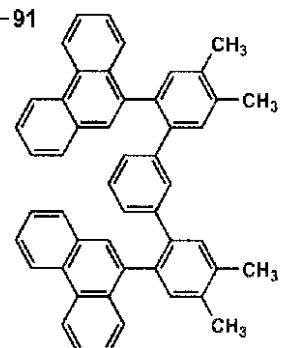
【0107】

【化53】

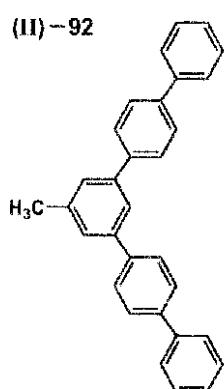
(II)-90



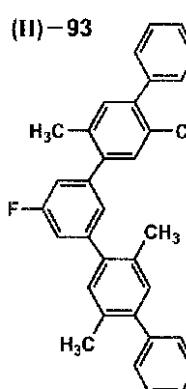
(II)-91



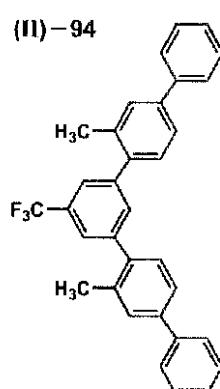
(II)-92



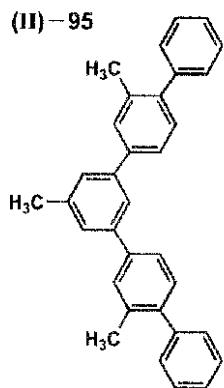
(II)-93



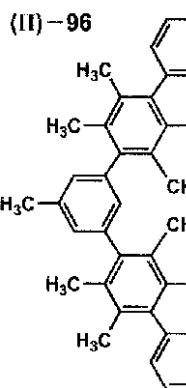
(II)-94



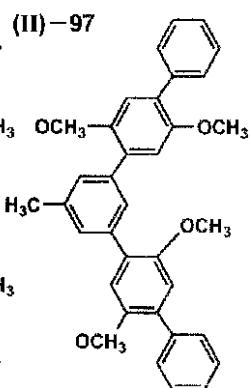
(II)-95



(II)-96

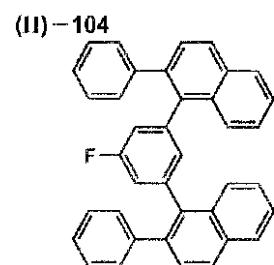
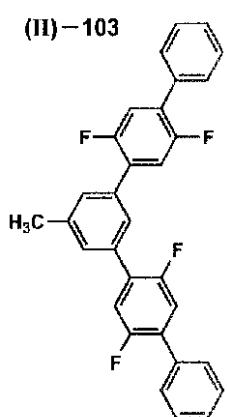
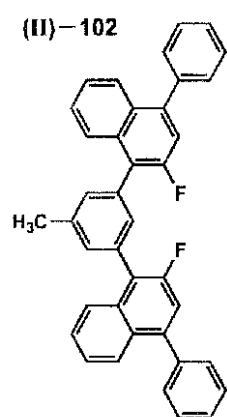
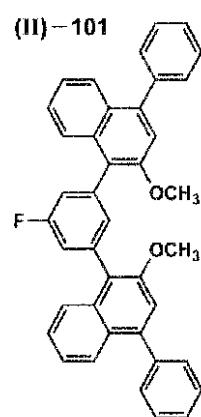
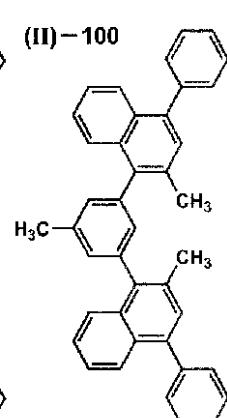
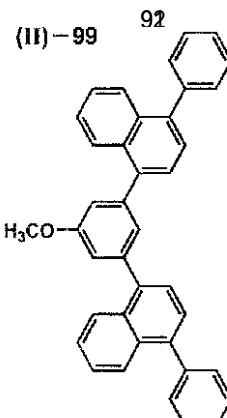
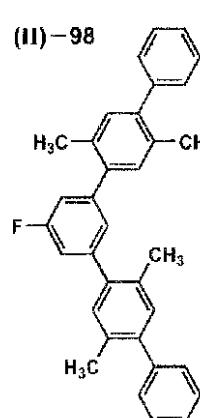


(II)-97



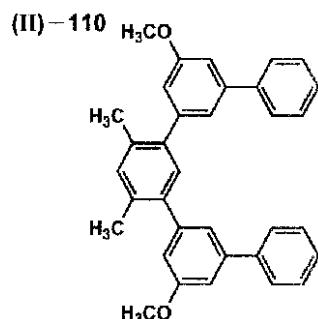
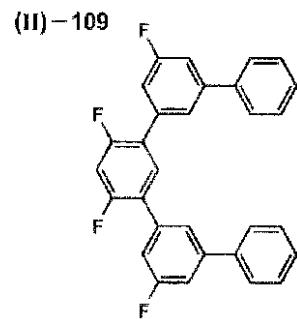
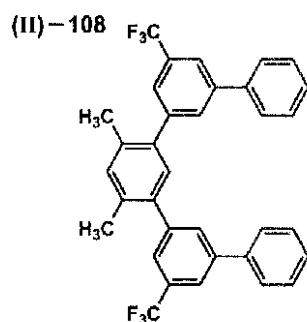
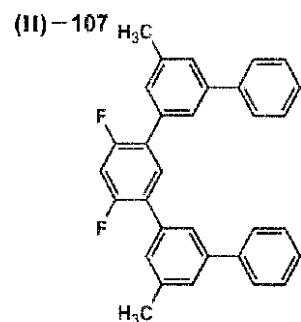
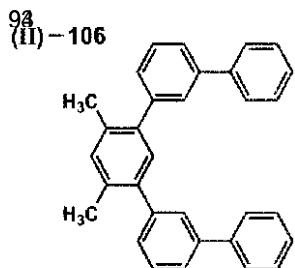
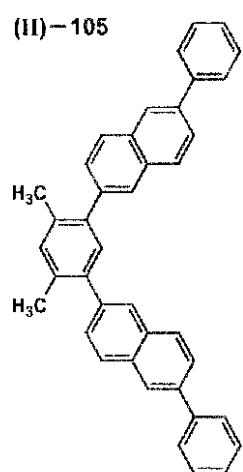
【0108】

【化54】



【0109】

【化55】



【0110】上記有機化合物及び後述する蛍光体を用いて発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピノコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法で薄膜化することにより形成することができるが、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、上記化合物の気相状態から沈着され形成された薄膜や、化合物の溶融状態または液相状態から固体化され形成された膜のことである。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別することができる。

【0111】また、この発光層は、特開昭57-51781号に記載されているように、樹脂等の接着材と共に上記有機化合物及び蛍光体を溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピノコート法等により薄膜化して形成することができる。このようにして形成された発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常は5nm～5μmの範囲である。用いる蛍光体の濃度は、上記有機化合物に対して0.0

0.1～1.0モル%が好ましい。

【0112】有機EL素子は、電子が流入する陰極、陰極と隣接する有機化合物からなる電子輸送層、正孔が流入する陽極、陽極と隣接する有機化合物からなる正孔輸送層、電子輸送層と正孔輸送層で挟持された有機化合物からなる発光層等を有する。

【0113】本発明の有機EL素子において、電子輸送層、正孔輸送層、発光層は単層でも多層積層でもよく、例えば多層構成の場合には有機物以外の層（例えばフッ化リチウム層や無機金属塩の層、またはそれらを含有する層など）を備えても良い。

【0114】本明細書の有機化合物が発光する色は、「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）に記載の、分光放射輝度計CS-1000（ミノルタ製）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、測定結果がCIE色度座標の紫青の領域である「Purpleish Blue」、青紫の領域である「Bluish Purple」又は紫の領域である「Purple」に入ること

を言い、特に「Bluish Purple」から「Purple」の領域であることが好ましい。

【0115】以下に本発明の有機EL素子の具体的な層構成を示す。

(i) 陽極 / 発光層 / 陰極

(ii) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極

(iii) 陽極 / 発光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

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

(v) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極。

【0116】本発明の有機化合物はいずれの層に含まれても良いが、好ましくは発光層、正孔阻止層又は電子輸送層に含まれる。また、有機化合物は、熱的安定性の観点からTgは100以上であることが好ましい。

【0117】本発明の有機EL素子に好ましく用いられる基板は、ガラス、プラスチックなどの種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はない。本発明のエレクトロルミネッセンス素子に好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性プラスチックフィルムを挙げることができる。特に携帯用途で有る場合落下等の衝撃による破壊を避けるためフレキシブル性を有する光透過性プラスチックフィルムであってもよい。

【0118】光透過性プラスチックフィルムとしては、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)、ポリエーテルスルホン(PES)、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート(PC)、セルローストリアセテート(TAC)、セルロースアセテートプロピオネート(CAP)等からなるフィルム等が挙げられる。

【0119】発光層は、(1)電界印加時に、陽極、正孔注入層又は、正孔輸送層により正孔を注入することができ、かつ陰極、電子輸送層又は電子注入層より電子を注入することができる注入機能、(2)注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる輸送機能、(3)電子と正孔の再結合の場を発光層内部に提供し、これを発光につなげる発光機能などを有している。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違いがあるてもよく、また、正孔と電子の移動度で表される輸送機能に大小があるてもよいが、どちらか一方の電荷を移動させる機能を有するものが好ましい。この発光層に用いられる発光材料の種類については特に制限はなく、従来有機EL素子における発光材料として公知のものを用いることができる。このような発光材料は主に有機化合物であり、所望の色調により、例えば、Macromol. Symp. 125巻17頁から26頁に記載の化合物が挙げられる。

【0120】発光材料は発光性能の他に、前記の正孔注入機能や電子注入機能を併せ持っていても良く、前記の正孔注入材料や電子注入材料の殆どが発光材料としても使用できる。

【0121】発光材料はp-ポリフェニレンビニレンやポリフルオレンのような高分子材料でも良く、さらに前記発光材料を高分子鎖に導入した、または前記発光材料を高分子の主鎖とした高分子材料を使用しても良い。

【0122】また、発光層にはドーパント(ゲスト物質)を併用してもよく、EL素子のドーパントとして使用され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。

【0123】ドーパントの具体例としては、例えばキナクリドン、DCM、クマリン誘導体、ローダミン、ルブレン、デカシクレン、ピラゾリン誘導体、スクアリリウム誘導体、ユーロピウム錯体等がその代表例として挙げられる。

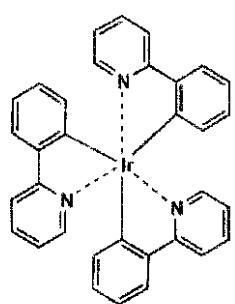
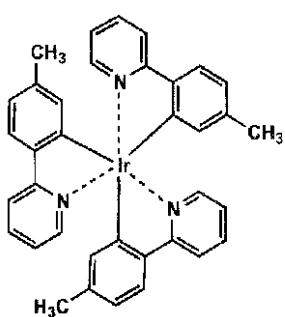
【0124】また、ドーパントは3重項励起子の発光を示す燐光性化合物であってもよい。具体的には、重金属錯体系化合物であり、好ましくは元素の周期律表でVIII属の金属を中心金属とする錯体系化合物であり、さらに好ましくは、オスミウム、イリジウムまたは白金錯体系化合物である。

【0125】以下に、本発明で用いられる燐光性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。これらの化合物は、例えば、Inorg. Chem. 40巻、1704-1711に記載の方法等により合成できる。

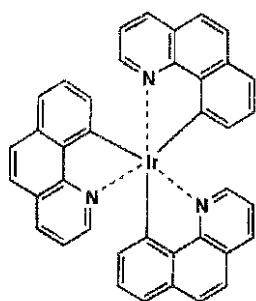
【0126】

【化56】

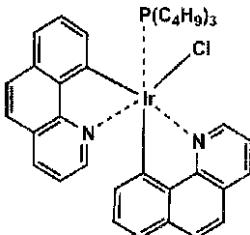
Ir-1

Ir-2⁹⁸

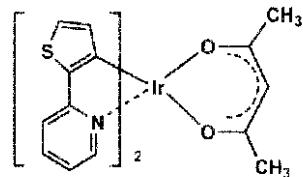
Ir-3



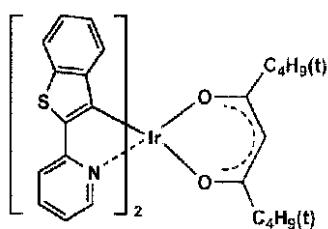
Ir-4



Ir-5

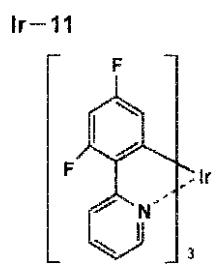
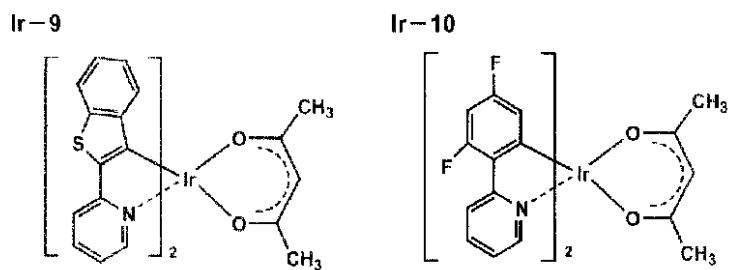
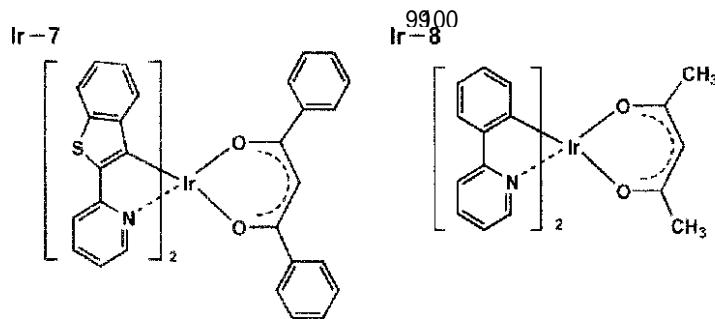


Ir-6

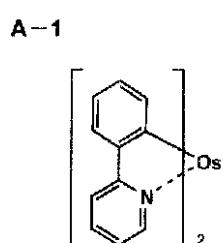
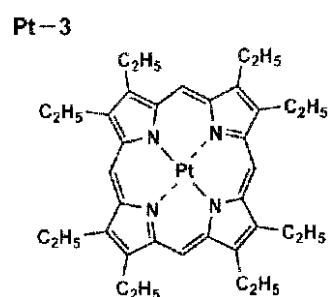
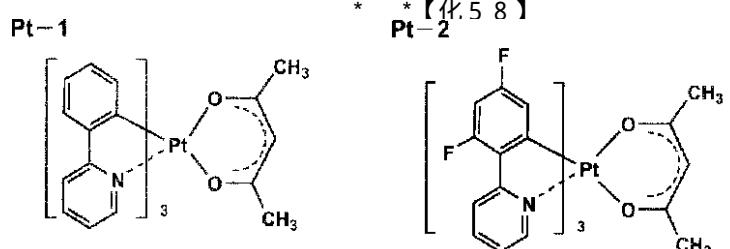


【0127】

【化57】



【0128】



【0129】この発光層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンドル法、キャスト法、LB法などの公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。発光層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm～5μmの範囲で選ばれる。この発光層は、これらの発光材料一種又は二種以上からなる一層構造であってよいし、あるいは、同一組成又は異種組成の複数層からなる積層構造であってよい。

【0130】また、この発光層は、特開昭57-51781号公報に記載されているように、樹脂などの接着材と共に上記発光材料を溶剤に溶かして溶液としたのち、これをスピンドル法などにより薄膜化して形成することができる。このようにして形成された発光層の膜厚について特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常は5nm～5μmの範囲である。

【0131】さらに、陽極と発光層または正孔輸送層の

間、および、陰極と発光層または電子輸送層との間には電荷注入層（バッファー層、電極界面層）を存在させてよい。

【0132】電荷注入層とは、駆動電圧低下や発光効率向上のために電極と有機層間に設けられる層のこと、「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」（第123頁～第166頁）に詳細に記載されており、陽極バッファー層（正孔注入層）と陰極バッファー層（電子注入層）とがある。

【0133】陽極バッファー層（正孔注入層）は、特開平9-45479号、同9-260062号、同8-288069号等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファー層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファー層、アモルファスカーボンバッファー層、ポリアニリン（エメラルдин）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファー層等が挙げられる。

【0134】陰極バッファー層（電子注入層）は、特開平6-325871号、同9-17574号、同10-74586号等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファー層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファー層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファー層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファー層等が挙げられる。

【0135】上記バッファー層（電荷注入層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1～100nmの範囲が好ましい。

【0136】さらに上記基本構成層の他に必要に応じてその他の機能を有する層を積層してもよく、例えば特開平11-204258号、同11-204359号、および「有機EL素子とその工業化最前線（1998年1月30日 エヌ・ティー・エス社発行）」の第237頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層などのような機能層を有していても良い。

【0137】本発明の有機EL素子においては、上記発光層、正孔輸送層、電子輸送層、正孔阻止層、陰極バッファー層（電子注入層）または陽極バッファー層（正孔注入層）の少なくとも何れか1つの層内に本発明の化合物の少なくとも1種が存在するものである。

【0138】このEL素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4eV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。

【0139】該陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させ、フォト

リソグラフィー法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度を余り必要としない場合（100μm以上程度）は、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。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、又、陽極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましい。更に、膜厚は、材料にもよるが、通常10nm～1μm、好ましくは10～200nmの範囲で選ばれる。

10 【0140】一方、陰極としては、仕事関数の小さい（4eV以下）金属（電子注入性金属と称する）、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム・カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム（Al₂O₃）混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属などが挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化などに対する耐久性の点から、電子注入性金属と、これより仕事関数の値が大きく安定な金属である第2金属との混合物、例えばマグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム（Al₂O₃）混合物、リチウム/アルミニウム混合物などが好適である。

20 【0141】該陰極は、これらの電極物質を、蒸着やスパッタリングなど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。又、陰極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましく、膜厚は通常10nm～1μm、好ましくは50～200nmの範囲で選ばれる。尚、発光を透過させるため、有機EL素子の陽極又は陰極の何れか一方が透明又は半透明であれば、発光効率が向上し好都合である。

30 【0142】次に、必要に応じて設けられる正孔注入層又は正孔輸送層は、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、この正孔注入層又は正孔輸送層を陽極と発光層の間に介在させることにより、より低い電界で多くの正孔が発光層に注入され、その上、発光層に陰極、電子注入層又は電子輸送層より注入された電子は、発光層と正孔注入層又は正孔輸送層の界面に存在する電子の障壁により発光層内の界面に累積され、発光効率が向上するなど、発光性能の優れた素子となる。

40 【0143】この正孔注入層及び正孔輸送層の材料については、前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、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものや、EL素子の正孔注入層及び正孔輸送層に使用され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。

【0144】上記正孔注入層及び正孔輸送層に用いられ

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

【0145】正孔注入材料及び正孔輸送材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第3級アミン化合物を用いることが好ましい。上記芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N,N,N,N-テトラフェニル-4,4-ジアミノフェニル；N,N-ジフェニル-N,N-ビス(3-メチルフェニル)-[1,1-ビフェニル]-4,4-ジアミン(TP D)；2,2-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)プロパン；1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン；N,N,N,N-テトラ-p-トリル-4,4-ジアミノビフェニル；1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン；ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン；ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン；N,N-ジフェニル-N,N-ジ(4-メトキシフェニル)-4,4-ジアミノビフェニル；N,N,N,N-テトラフェニル-4,4-ジアミノジフェニルエーテル；4,4-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル；N,N,N-トリ(p-トリル)アミン；4-(ジ-p-トリルアミノ)-4-[4-(ジ-p-トリルアミノ)スチリル]スチルベン；4-N,N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン；3-メトキシ-4-N,N-ジフェニルアミノスチルベンゼン；N-フェニルカルバゾール、更には、米国特許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もの、例えば4,4-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号に記載されるトリフェニルアミンユニットが三つスターバースト型に連結された4,4,4-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MT DATA)等が挙げられる。

【0146】さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、また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。

【0147】又、p型-Si, p型-SiC等の無機化

合物も正孔注入材料又は正孔輸送材料として使用することができる。この正孔注入層及び正孔輸送層は、上記材料を、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法など、公知の方法により薄膜化することにより形成できる。正孔注入層及び正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度である。

【0148】この正孔注入層及び正孔輸送層は、上記材料の1種又は2種以上からなる1層構造であってもよく、同一組成又は異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

【0149】更に、必要に応じて用いられる電子注入層及び電子輸送層は、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

【0150】この電子注入層及び電子輸送層に用いられる材料の例としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体などが挙げられる。又、特開昭59-194393号に記載される一連の電子伝達性化合物は、該公報では発光層を形成する材料として開示されているが、本発明者らが検討の結果、電子注入材料又は電子輸送材料として用い得ることが判った。更に、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引性基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体なども、電子注入材料又は電子輸送材料として用いることができる。

【0151】さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、また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。

【0152】又、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス(8-キノリノール)アルミニウム(A1q)、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-ジブロモ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(Znq)等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も電子注入材料又は電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリーも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基などで置換されているものも、電子注入材料又は電子輸送材料として好ましく用いることができる。

又、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、電子注入材料又は電子輸送材料として用いるこ

とができるし、正孔注入層及び正孔輸送層と同様に、n型-Si, n型-SiC等の無機半導体も電子注入材料又は電子輸送材料として用いることができる。

【0153】この電子注入層及び電子輸送層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンドルコート法、キャスト法、LB法などの公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。電子注入層及び電子輸送層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5nm～5μmの範囲で選ばれる。

【0154】この電子注入層及び電子輸送層は、これらの電子注入材料又は電子輸送材料1種又は2種以上からなる1層構造でもよいし、同一組成又は異種組成の複数層から成る積層構造でもよい。

【0155】次に、該有機EL素子を作製する好適な例を説明する。例として、前記の陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極からなるEL素子の作製法について説明すると、まず適当な基板上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、1μm以下、好ましくは10～200nmの範囲の膜厚になるように、蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層/電子注入層、正孔阻止層、陰極バッファー層または陽極バッファー層等の有機または無機の材料からなる薄膜を形成させる。

【0156】この有機薄膜層の薄膜化の方法としては、前記の如くスピンドルコート法、キャスト法、蒸着法などがあるが、均質な膜が得られやすく、かつpinホールが生成しにくいなどの点から、真空蒸着法またはスピンドルコート法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用しても良い。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、分子堆積膜の目的とする結晶構造、会合構造などにより異なるが、一般にポート加熱温度50～450、真空度10⁻⁶～10⁻²Pa、蒸着速度0.01～50nm/秒、基板温度-50～300、膜厚5nm～5μmの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

【0157】これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1μm以下好ましくは50～200nmの範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望のEL素子が得られる。この有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわないが、その際には作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。また作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。このようにして得られたEL素子に、直流電圧を印加する場合には、陽極を+、陰極を-の極

性として電圧5～40V程度を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が+、陰極が-の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

【0158】次に本発明において、色変換部を有する有機EL素子の説明をする。色変換部は有機EL素子の発光層からの発光を吸収して、波長変換し、異なる波長の蛍光を発光する蛍光色素を含有するものである。これにより有機EL素子が、発光層から発する光の色のみではなく、色変換層により変換された他の色も表示することが可能となる。色変換部としては、色変換層であることが好ましい。

【0159】蛍光色素としては、有機蛍光体または無機蛍光体でもよく、変換したい波長によって使い分けることができる。

【0160】有機蛍光体としては、クマリン系色素、ビラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素などが挙げられる。

【0161】無機蛍光体としては、粒径が3μm以下の微粒子のものが好ましく、さらにその製法が液相法を経由された合成された単分散に近い超微粒子蛍光体であることが好ましい。

【0162】無機蛍光体は、結晶母体と賦活剤によって構成される無機系蛍光体、または希土類錯体系蛍光体が挙げられる。

【0163】無機系蛍光体の組成は特に制限はないが、結晶母体である Y_2O_3S 、 Zn_2SiO_4 、 $Ca_5(P_2O_4)_3Cl$ 等に代表される金属酸化物及び ZnS 、 SrS 、 CaS 等に代表される硫化物に、 Ce 、 Pr 、 Nd 、 Pm 、 Sm 、 Eu 、 Gd 、 Tb 、 Dy 、 Ho 、 Er 、 Tm 、 Yb 等の希土類金属のイオンや Ag 、 Al 、 Mn 、 In 、 Cu 、 Sb 等の金属のイオンを賦活剤または共賦活剤として組み合わせたものが好ましい。

【0164】結晶母体を更に詳しく説明すると、結晶母体としては金属酸化物が好ましく、例えば、 $(X)_3Al_{16}O_{27}$ 、 $(X)_4Al_{14}O_{25}$ 、 $(X)_3Al_2Si_2O_{10}$ 、 $(X)_4Si_2O_8$ 、 $(X)_2Si_2O_6$ 、 $(X)_2P_2O_7$ 、 $(X)_2P_2O_5$ 、 $(X)_5(P_2O_7)_3Cl$ 、 $(X)_2Si_3O_8 - 2(X)Cl_2$ 〔ここで、Xはアルカリ土類金属を表す。なお、Xで表されるアルカリ土類金属は单一成分でも2種類以上の混合成分でもよく、その混合比率は任意でよい。〕のようなアルカリ土類金属で置換された酸化アルミニウム、酸化ケイ素、リン酸、ハロリン酸等が代表的な結晶母体として挙げられる。

【0165】その他の好ましい結晶母体としては、亜鉛の酸化物および硫化物、イットリウムやガドリウム、ラ

ンタン等の希土類金属の酸化物およびその酸化物の酸素の一部を硫黄原子に換えた(硫化物)もの、および希土類金属の硫化物およびそれらの酸化物や硫化物に任意の金属元素を配合したもの等が挙げられる。

【0166】結晶母体の好ましい例を以下に挙げる。
 $Mg_4GeO_{5.5}F$ 、 Mg_4GeO_6 、 ZnS 、 Y_2O_2S 、 $Y_3Al_5O_{12}$ 、 Y_2SiO_{10} 、 Zn_2SiO_4 、 Y_2O_3 、 $BaMgAl_{10}O_{17}$ 、 $BaAl_{12}O_{19}$ 、(Ba、Sr、Mg)O_xAl₂O₃、(Y、Gd)BO₃、(Zn、Cd)S、SrGa₂S₄、SrS、GaS、SnO₂、Ca₁₀(PO₄)₆(F、Cl)₂、(Ba、Sr)(Mg、Mn)Al₁₀O₁₇、(Sr、Ca、Ba、Mg)Al₁₁O₁₉、GdMgB₅O₁₀、Sr₂P₂O₇、Sr₄Al₁₄O₂₅、Y₂SO₄、Gd₂O₂S、Gd₂O₃、YVO₄、Y(P、V)O₄等である。

【0167】以上の結晶母体及び賦活剤または共賦活剤は、同族の元素と一部置き換えたものでも構わないし、とくに元素組成に制限はなく、青紫領域の光を吸収して可視光を発するものであればよい。

【0168】本発明において、無機系蛍光体の賦活剤、共賦活剤として好ましいものは、La、Eu、Tb、Ce、Yb、Pr等に代表されるランタノイド元素のイオン、Ag、Mn、Cu、In、Al等の金属のイオンであり、そのドープ量は母体に対して0.001~100モル%が好ましく、0.01~50モル%がさらに好ましい。

【0169】賦活剤、共賦活剤は結晶母体を構成するイオンの一部を上記ランタノイドのようなイオンに置き換えることでその結晶の中にドープされる。

【0170】蛍光体結晶の実際の組成は、厳密に記載すれば以下のような組成式になるが、賦活剤の量の大小は本質的な蛍光特性に影響を及ぼさないことが多いので、以下特にことわりのない限り下記xやyの数値は記載しないこととする。例えばSr_{4-x}Al₁₄O₂₅:Eu²⁺_xは、本発明においてはSr₄Al₁₄O₂₅:Eu²⁺と表記する。

【0171】以下に代表的な無機系蛍光体(結晶母体と賦活剤によって構成される無機蛍光体)の組成式を記載するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

(Ba₂Mg_{1-z})_{3-x-y}Al₁₆O₂₇:Eu²⁺_x, Mn²⁺_y、Sr^{4-x}Al₁₄O₂₅:Eu²⁺_x、(Sr_{1-z}Ba_z)_{1-x}Al₂Si₂O₈:Eu²⁺_x、Ba²⁺_xSiO₄:Eu²⁺_x、Sr²⁺_xSiO₄:Eu²⁺_x、Mg²⁺_xSiO₄:Eu²⁺_x、(BaSr)_{1-x}SiO₄:Eu²⁺_x、Y_{2-x-y}SiO₅:Ce³⁺_x, Tb³⁺_y、Sr²⁺_xP₂O₇:Eu²⁺_x、(Ba,Ca,Mg_{1-y-z})_{5-x}(PO₄)₃Cl:Eu²⁺_x、Sr²⁺_xSi₃O₈-2SrCl₂:Eu²⁺_x、[x, y及びzはそれぞれ1以下の任意の数を表す。]

以下に本発明に好ましく使用される無機系蛍光体を示すが、本発明はこれらの化合物に限定されるものではない。

[青色発光 無機系蛍光体]

(BL-1) Sr₂P₂O₇:Sn⁴⁺
 (BL-2) Sr₄Al₁₄O₂₅:Eu²⁺
 (BL-3) BaMgAl₁₀O₁₇:Eu²⁺
 (BL-4) SrGa₂S₄:Ce³⁺
 (BL-5) CaGa₂S₄:Ce³⁺
 10 (BL-6) (Ba, Sr)(Mg, Mn)Al₁₀O₁₇:Eu²⁺
 (BL-7) (Sr, Ca, Ba, Mg)₁₀(PO₄)₆Cl₂:Eu²⁺
 (BL-8) BaAl₂SiO₈:Eu²⁺
 (BL-9) Sr₂P₂O₇:Eu²⁺
 (BL-10) Sr₅(PO₄)₃Cl:Eu²⁺
 (BL-11) (Sr, Ca, Ba)₅(PO₄)₃Cl:Eu²⁺
 (BL-12) BaMg₂Al₁₆O₂₇:Eu²⁺
 20 (BL-13) (Ba, Ca)₅(PO₄)₃Cl:Eu²⁺
 (BL-14) Ba₃MgSi₂O₈:Eu²⁺
 (BL-15) Sr₃MgSi₂O₈:Eu²⁺

[緑色発光 無機系蛍光体]

(GL-1) (BaMg)Al₁₆O₂₇:Eu²⁺, Mn²⁺
 (GL-2) Sr₄Al₁₄O₂₅:Eu²⁺
 (GL-3) (SrBa)Al₂Si₂O₈:Eu²⁺
 (GL-4) (BaMg)₂SiO₄:Eu²⁺
 30 (GL-5) Y₂SiO₅:Ce³⁺, Tb³⁺
 (GL-6) Sr₂P₂O₇-Sr₂B₂O₅:Eu²⁺
 (GL-7) (BaCaMg)₅(PO₄)₃Cl:Eu²⁺
 (GL-8) Sr₂Si₃O₈-2SrCl₂:Eu²⁺
 (GL-9) Zr₂SiO₄, MgAl₁₁O₁₉:Ce³⁺, Tb³⁺
 (GL-10) Ba₂SiO₄:Eu²⁺
 (GL-11) Sr₂SiO₄:Eu²⁺
 (GL-12) (BaSr)SiO₄:Eu²⁺

[赤色発光 無機系蛍光体]

(RL-1) Y₂O₂S:Eu³⁺
 (RL-2) YAlO₃:Eu³⁺
 (RL-3) Ca₂Y₂(SiO₄)₆:Eu³⁺
 (RL-4) LiY₉(SiO₄)₆O₂:Eu³⁺
 (RL-5) YVO₄:Eu³⁺
 (RL-6) CaS:Eu³⁺
 (RL-7) Gd₂O₃:Eu³⁺
 (RL-8) Gd₂O₂S:Eu³⁺
 (RL-9) Y(P, V)O₄:Eu³⁺
 50 (RL-10) Mg₄GeO_{5.5}F:Mn⁴⁺

- (RL-11) $Mg_4GeO_6 : Mn^{4+}$
 (RL-12) $K_5Eu_{2.5}(WO_4)_{6.25}$
 (RL-13) $Na_5Eu_{2.5}(WO_4)_{6.25}$
 (RL-14) $K_5Eu_{2.5}(MoO_4)_{6.25}$
 (RL-15) $Na_5Eu_{2.5}(MoO_4)_{6.25}$

上記無機系蛍光体は、必要に応じて表面改質処理を施してもよく、その方法としてはシランカップリング剤等の化学的処理によるものや、サブミクロンオーダーの微粒子等の添加による物理的処理によるもの、さらにはそれらの併用によるもの等が挙げられる。

【0172】希土類錯体系蛍光体としては、希土類金属としてCe、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb等を有するものが挙げられ、錯体を形成する有機配位子としては、芳香族系、非芳香族系のどちらでも良く、下記一般式(B)で表される化合物が好ましい。

【0173】一般式(B) $Xa - (L_x) - (L_y)_n - (L_z) - Ya$

式中、 L_x 、 L_y 、 L_z はそれぞれ独立に2個以上の結合手を持つ原子を表し、 n は0または1を表し、 Xa は L_x の隣接位に配位可能な原子を有する置換基を表し、 Ya は L_z の隣接位に配位可能な原子を有する置換基を表す。さらに Xa の任意の部分と L_x とは互いに縮合して環を形成してもよく、 Ya の任意の部分と L_z とは互いに縮合して環を形成してもよく、さらに分子内に芳香族炭化水素環または芳香族複素環が少なくとも一つ存在する。

ただし、 $Xa - (L_x) - (L_y)_n - (L_z) - Ya$ が-ジケトン誘導体や-ケトエステル誘導体、-ケトアミド誘導体または前記ケトンの酸素原子を硫黄原子または- $N(R_{201})$ -に置き換えたもの、クラウンエーテルやアザクラウンエーテルまたはチアクラウンエーテルまたはクラウンエーテルの酸素原子を任意の数だけ硫黄原子または- $N(R_{201})$ -に置き換えたクラウンエーテルを表す場合には芳香族炭化水素環または芳香族複素環は無くてもよい。 $-N(R_{201})$ -において、 R_{201} は、水素原子、置換または無置換のアルキル基、置換または無置換のアリール基を表す。

【0174】一般式(B)において、 Xa および Ya で表される配位可能な原子とは、具体的には酸素原子、窒素原子、硫黄原子、セレン原子、テルル原子であり、特に酸素原子、窒素原子、硫黄原子であることが好ましい。

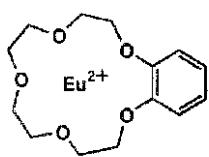
【0175】一般式(B)において、 L_x 、 L_y 、 L_z で表される2個以上の結合手を持つ原子としては、特に制限はないが、代表的には炭素原子、酸素原子、窒素原子、シリコン原子、チタン原子等が挙げられるが、好ましいものは炭素原子である。

【0176】以下に一般式(B)で表される希土類錯体系蛍光体の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

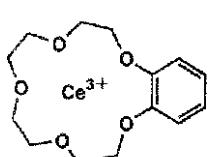
【0177】

【化59】

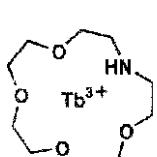
RE-1



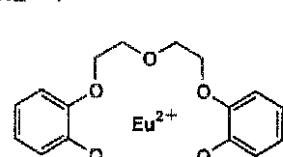
RE-2



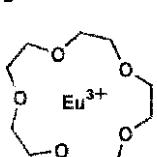
RE-3



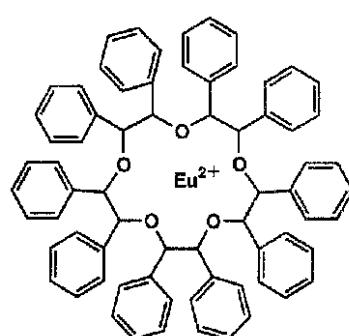
RE-4



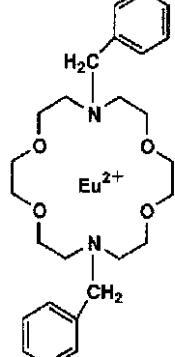
RE-5



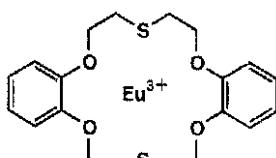
RE-6 112



RE-7



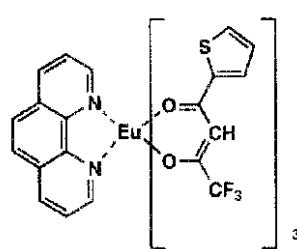
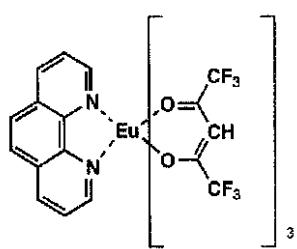
RE-8



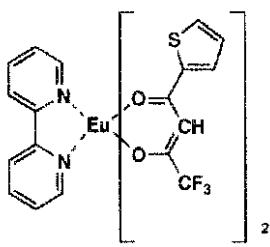
【0178】

【化60】

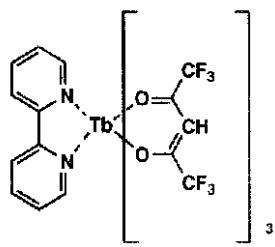
RE-9

RE-13^{11a}

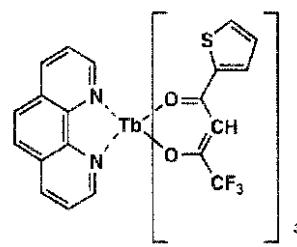
RE-10



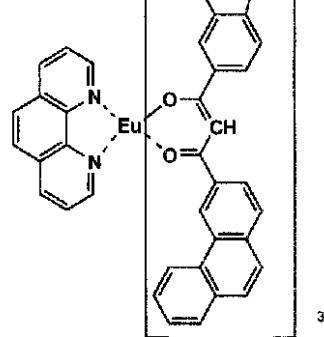
RE-14



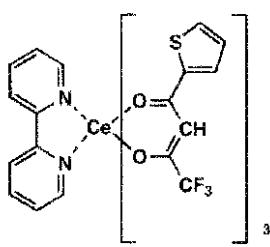
RE-11



RE-15



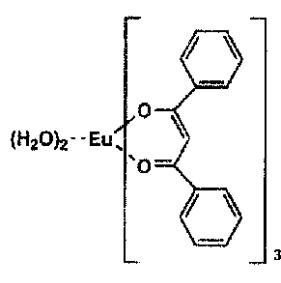
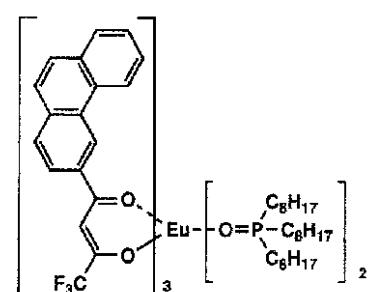
RE-12



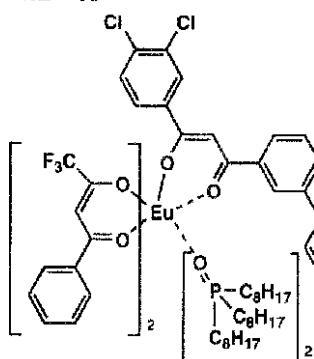
【0179】

【化61】

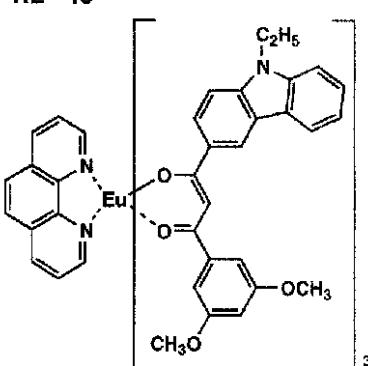
RE-16

RE-17¹¹⁶

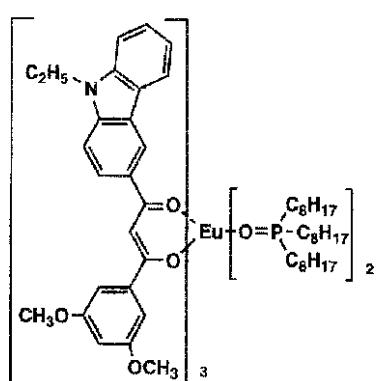
RE-18



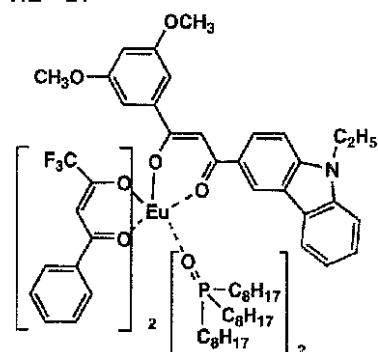
RE-19



RE-20

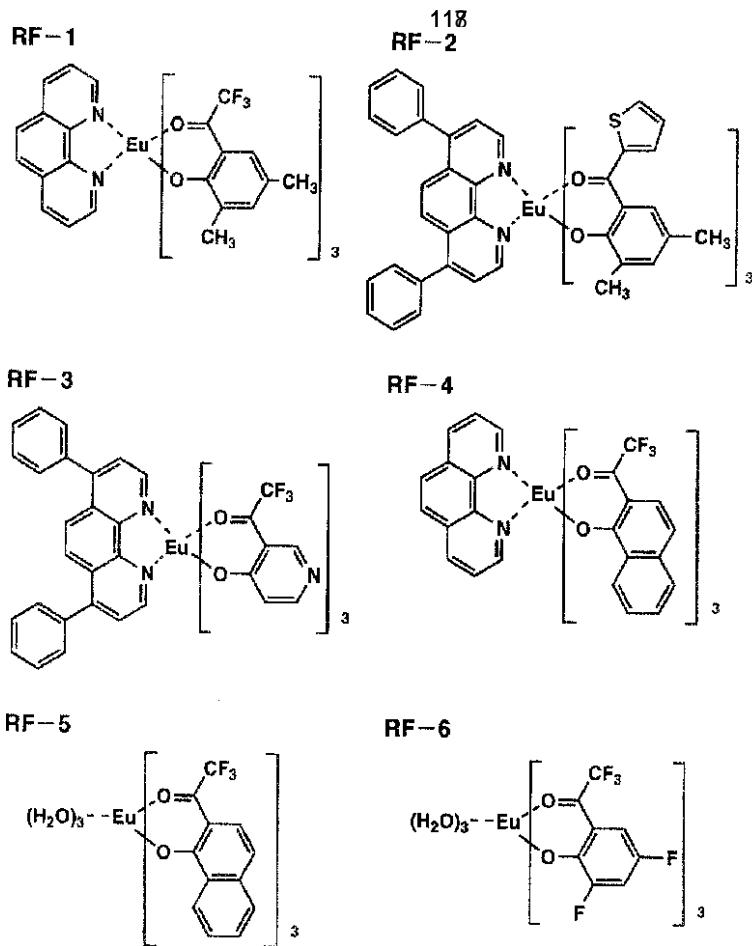


RE-21



【0180】

【化62】



【0181】色変換部を設ける場合は、前記光学的微小共振構造を有する有機EL部からの発光を吸収できる位置であれば特に限定はないが、透明電極と透明基体との間、または、透明基体の前記透明電極とは反対側（発光を取り出す前側）に設けることが好ましい。

【0182】上記色変換部は、上記蛍光体を蒸着あるいはスパッタリング法による製膜や、適当な樹脂をバインダとしてその中に分散させた塗布膜等いずれの形態であっても構わない。膜厚は、100nm～5mm程度が適当である。ここで、適当な樹脂をバインダとしてその中に分散させた塗布膜とする場合、蛍光体の分散濃度は、蛍光の濃度消光を起こすことがなく、かつ、有機EL部からの発光を十分に吸収できる範囲であればよい。蛍光体の種類によるが、使用する樹脂1gに対して 10^{-7} ～ 10^{-3} モル程度が適当である。無機蛍光体の場合は、濃度消光がほとんど問題とならないため、樹脂1gに対して0.1～10g程度使用できる。

【0183】本発明に用いられる封止手段としては、封止部材と、電極、透光性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おればよく、凹板状でも、平板状でもよい。また、透明性、電気絶縁性を特に問わない。具体的には、ガラス板、ポリマー板、金属板等が挙げられる。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、アルミニケイ酸ガラス、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ート、ポリエーテルサルファイト、ポリサルファン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウムおよびタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。なお、封止部材を凹状に加工するのは、サンドブラスト加工、化学エッティング加工等が使われる。

【0184】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および熱硬化型接着剤、2-シアノアクリル酸エチルなどの湿気硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系などの熱および化学硬化型（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よいし、スクリーン印刷のように印刷し

てもよい。

【0185】封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相および液相では、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。

【0186】吸湿性化合物としては例えば金属酸化物(例えば、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム等)、硫酸塩(例えば、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸コバルト等)、金属ハロゲン化物(例えば、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、フッ化セシウム、フッ化タンタル、臭化セリウム、臭化マグネシウム、沃化バリウム、沃化マグネシウム等)、過塩素酸類(例えば過塩素酸バリウム、過塩素酸マグネシウム等)等があげられ、硫酸塩、金属ハロゲン化物および過塩素酸類においては無水塩が好適に用いられる。

【0187】さらに、本発明の有機EL素子は、蛍光物質等を含有した色変換層または色変換フィルターを素子の内部または外部に有していても良く、また、カラーフィルター等の色相改良フィルターを有していても良い。

【0188】本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子から構成される表示装置の一例を図面に基づいて以下に説明する。

【0189】図1は、有機エレクトロルミネッセンス素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。有機エレクトロルミネッセンス素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。

【0190】ディスプレイ1は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行う制御部B等からなる。

【0191】制御部Bは、表示部Aと電気的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部Aに表示する。

【0192】図2は、表示部の模式図である。表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。図においては、画素3の発光した光が、白矢印方向(下方向)へ取り出される場合を示している。配線部の走査線5及び複数のデータ線6は、それぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している(詳細は図示せず)。

【0193】画素3は、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受

け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を、適宜、同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

【0194】次に、画素の発光プロセスを説明する。図3は、画素の模式図である。画素は、有機エレクトロルミネッセンス素子10、スイッチングトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデンサ13等を備えている。複数の画素に有機エレクトロルミネッセンス素子10として、赤色、緑色、青色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。

【0195】図3において、制御部からデータ線6を介してスイッチングトランジスタ11のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部から走査線5を介してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。

【0196】画像データ信号の伝達により、コンデンサ13が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トランジスタ12は、ドレインが電源ライン7に接続され、ソースが有機エレクトロルミネッセンス素子10の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン7から有機エレクトロルミネッセンス素子10に電流が供給される。

【0197】制御部の順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフしてもコンデンサ13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機エレクトロルミネッセンス素子10の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機エレクトロルミネッセンス素子10が発光する。

【0198】すなわち、有機エレクトロルミネッセンス素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機エレクトロルミネッセンス素子10に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動トランジスタ12を設けて、複数の画素それぞれの有機エレクトロルミネッセンス素子10の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

【0199】ここで、有機エレクトロルミネッセンス素子10の発光は、複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。

【0200】また、コンデンサ13の電位の保持は、次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させててもよい。

【0201】本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみデータ信号に応じて有機エレクトロルミネッセンス素子を発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。

【0202】図4は、パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。図4において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に設けられている。

【0203】順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。

【0204】パッシブマトリクス方式では画素3にアクティブ素子が無く、製造コストの低減が計れる。

【0205】

【実施例】以下、実施例を挙げて本発明を詳細に説明するが、本発明の態様はこれに限定されない。

【0206】実施例1

発光材料としての評価

陽極として一方の表面にITOを100nm製膜した透明ガラス基板(ミクロ技術研究所製、表面抵抗30Ω)を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、タンタル製抵抗加熱ポートに、化合物H-1を200mg入れ、別のタンタル製抵抗加熱ポートに比較の化合物L-1を200mg入れ、別のタンタル製抵抗加熱ポートにBCを200mg入れ、別のタンタル製抵抗加熱ポートにA1q3を200mg入れて真空蒸着装置に取付けた。

【0207】次いで、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、化合物H-1の入った前記加熱ポートに通電し*

*で、膜厚30nmの正孔輸送層を設けた。更に、化合物L-1の入った前記加熱ポートに通電して前記正孔輸送層上に蒸着して、膜厚40nmの発光層を設けた。更に、BCの入った前記加熱ポートに通電して前記発光層上に蒸着して、膜厚10nmの正孔阻止層を設けた。更に、A1q3の入った前記加熱ポートに通電して前記正孔阻止層上に膜厚20nmの電子輸送層を設けた。

【0208】次に、真空槽をあけ、電子輸送層の上にステンレス鋼製の長方形穴あきマスクを設置し、一方、タンタル製抵抗加熱ポートにマグネシウム3gを入れ、タンゲステン製の蒸着用バスケットに銀を0.5g入れ、再び真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧した後、マグネシウム入りのポートに通電してマグネシウムを蒸着し、この際、同時に銀のバスケットを加熱し、銀を蒸着し、膜厚110nmにして、前記マグネシウムと銀との混合物から成る対向電極とすることにより、比較用有機EL素子OLED1-1を作製した。

【0209】これと同様にして、有機EL素子OLED1-1の発光材料である化合物L-1のみを表1に示す化合物に置き換えた有機EL素子OLED1-2～OLED1-15を作製した。

【0210】これらの素子のITO電極を陽極、マグネシウムと銀からなる対向電極として温度23度、乾燥窒素ガス雰囲気下で10V直流電圧印加による連続点灯を行い、点灯開始時の発光輝度(cd/m²)および輝度の半減する時間、発光効率(ルーメン/W)を測定した。結果を表1に示す。(但し、発光輝度、輝度の半減する時間、及び発光効率は、有機EL素子OLED1-1の発光輝度、輝度の半減する時間、及び発光効率をそれぞれ100とした相対値で表した。)なお、発光輝度はミノルタ製CS-1000を用いて測定した。

【0211】

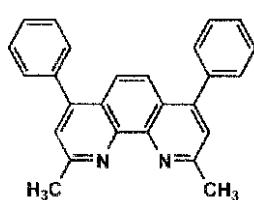
【表1】

No.	発光材料	発光輝度 (相対値)	輝度の半減時間 (相対値)	発光効率 (相対値)	発光色	備考
OLED1-1	L-1	100	100	100	青紫	比較例
OLED1-2	L-2	115	103	95	青紫	比較例
OLED1-3	L-3	120	110	103	青	比較例
OLED1-4	L-4	116	112	115	青	比較例
OLED1-5	L-5	117	118	109	青	比較例
OLED1-6	(I)-1	159	133	139	青紫	本発明
OLED1-7	(I)-11	145	145	143	青紫	本発明
OLED1-8	(I)-44	142	140	152	青紫	本発明
OLED1-9	(I)-62	146	178	149	青紫	本発明
OLED1-10	(I)-101	141	182	161	青紫	本発明
OLED1-11	(I)-9	139	131	165	青紫	本発明
OLED1-12	(II)-18	143	167	155	青紫	本発明
OLED1-13	(II)-32	144	182	164	青紫	本発明
OLED1-14	(II)-64	150	181	172	青紫	本発明
OLED1-15	(II)-83	145	179	169	青紫	本発明

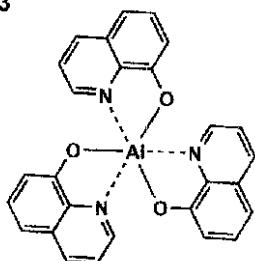
【0212】

【化63】

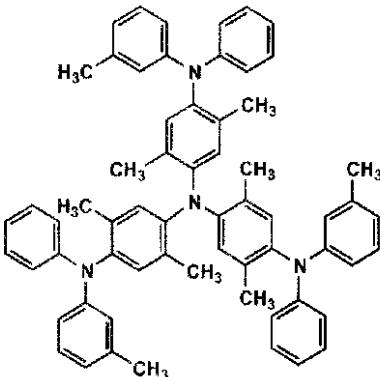
BC



化合物H-1

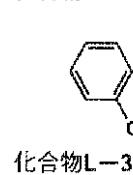
Alq₃¹²⁴

化合物H-1

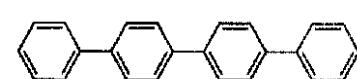


化合物L-1

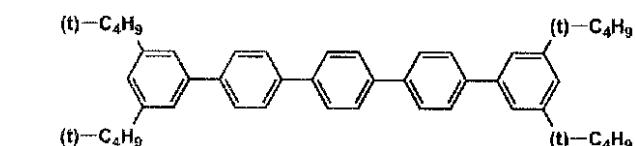
化合物L-2



化合物L-3



化合物L-4

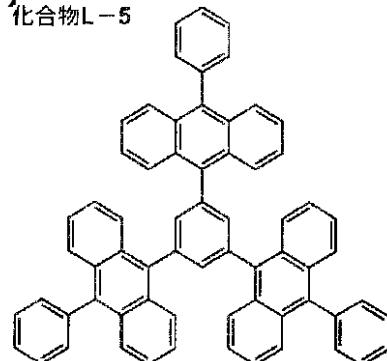


化合物L-5

【0213】

【化64】

化合物L-5



【0214】表1から明らかなように、本発明の化合物を有機EL素子の発光材料として使用した試料(OLED1-6～OLED1-15)はいずれも発光色が青紫

で、発光輝度が高く高効率・長寿命であることがわかる。

【0215】実施例2

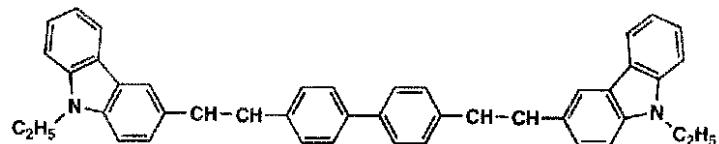
発光層のホスト材料としての評価1

本発明の化合物(I)-32とDCM-2を100:1の質量比で蒸着した膜厚40nmの発光層を使用する以外は、実施例1と同様の方法で有機EL素子OLED2-1を作製した。この素子を温度23度、乾燥窒素ガス雰囲気下で15V直流電圧印加すると、赤色の発光が得られた。

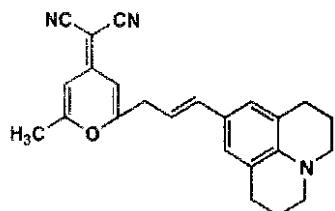
【0216】上記有機EL素子OLED2-1の、DCM-2をQd-2またはBCzVBiに替えることによって、それぞれ、緑色または青色の発光が得られた。

【0217】

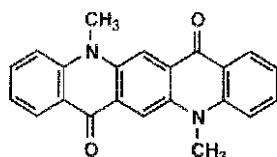
【化65】



DCM-2



Qd-2



【0218】実施例3

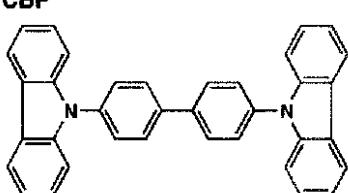
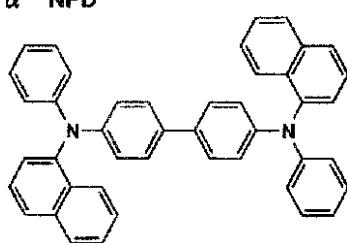
発光層のホスト材料としての評価 2

陽極として一方の表面にITOを100nm製膜した透明ガラス基板(ミクロ技術研究所製、表面抵抗30Ω)を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、タンタル製抵抗加熱ポートに、-NPDを200mg入れ、別のタンタル製抵抗加熱ポートにCBPを2mg^{※NPD}入れ、

0.0 mg入れ、別のタンタル製抵抗加熱ポートにB Cを2.00 mg入れ、さらに別のタンタル製抵抗加熱ポートにA 1 q 3を2.00 mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

【 0 2 1 9 】

【化 6 6】



【0220】次いで、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、-NPDの入った前記加熱ポートに通電して、膜厚30nmの正孔輸送層を設けた。更に、CBPとIr-1の入った前記加熱ポートに通電して前記正孔輸送層上に共蒸着して、膜厚20nmの発光層を設けた。更に、BCの入った前記加熱ポートに通電して前記発光層上に蒸着して、膜厚10nmの正孔阻止層を設けた。さらにその上にAlq3の入った前記ポートに通電して前記正孔阻止層上に蒸着して膜厚40nmの電子輸送層を設けた。

【0221】次に、真空槽をあけ、電子輸送層の上にステンレス鋼製の長方形穴あきマスクを設置し、一方、タンタル製抵抗加熱ポートにマグネシウム 3 gを入れ、タンゲステン製の蒸着用バスケットに銀を 0.5 g入れ、再び真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧した後、マグネシウム入りのポートに通電してマグネシウムを蒸着し、こ 30

の際、同時に銀のバスケットを加熱し、銀を蒸着し、膜厚110nmにして、前記マグネシウムと銀との混合物から成る対向電極とすることにより、比較用有機EL素子OLED3-1を作製した。

【0222】上記において、発光層のホスト材料であるCBPを表2に示す化合物に置き換えた以外は、全く同じ方法で、有機EL素子OLED3-2～OLED3-1.4を作製した。

【0223】これらの素子のITO電極を陽極、マグネシウムと銀からなる対向電極を陰極として温度23度、乾燥室素ガス雰囲気下で11V直流電圧印加による連続点灯を行い、点灯開始時の発光輝度(cd/m^2)、輝度の半減する時間及び発光効率(ルーメン/W)を測定した。結果を表2に示す。(但し、発光輝度、輝度の半減する時間、及び発光効率は、有機EL素子OLED-3-1の発光輝度、輝度の半減する時間、及び発光効率を

それぞれ100とした相対値で表した。) なお、発光色は緑色であった。

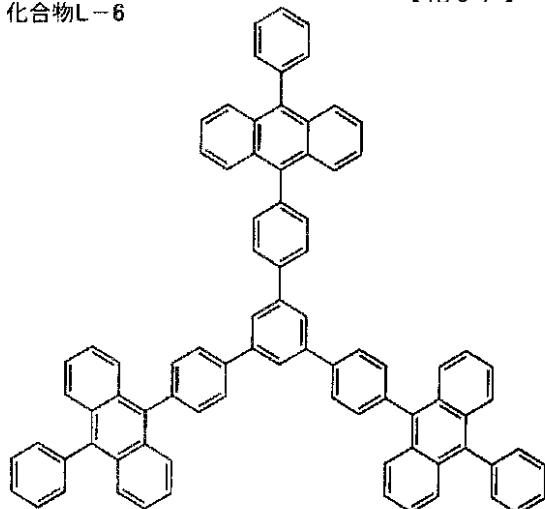
*【0224】

*【表2】

No.	発光層 (ホスト)	発光輝度 (相対値)	輝度の半減時間 (相対値)	発光効率 (相対値)	備考
OLED3-1	CBP	100	100	100	比較例
OLED3-2	L-5	115	111	102	比較例
OLED3-3	L-6	101	118	99	比較例
OLED3-4	L-7	119	105	105	比較例
OLED3-5	(I)-9	148	152	158	本発明
OLED3-6	(I)-38	147	159	167	本発明
OLED3-7	(I)-65	153	161	161	本発明
OLED3-8	(I)-69	148	160	160	本発明
OLED3-9	(I)-124	155	152	185	本発明
OLED3-10	(II)-12	162	153	155	本発明
OLED3-11	(II)-20	158	155	170	本発明
OLED3-12	(II)-40	163	160	168	本発明
OLED3-13	(II)-64	162	165	182	本発明
OLED3-14	(II)-106	158	164	175	本発明

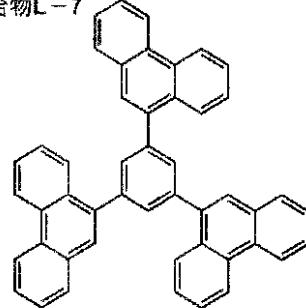
【0225】

化合物L-6

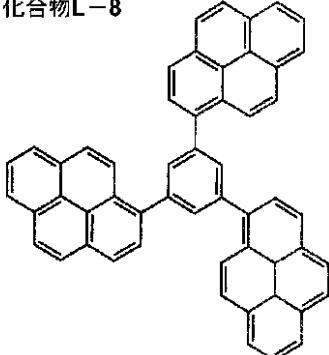


* *【化67】

化合物L-7



化合物L-8



【0226】表2から明らかなように、本発明の化合物を有機EL素子の発光層のホスト材料として使用した試料(OLED3-5~OLED3-14)は、発光性化合物をドーパントにしても、高効率・長寿命の素子を実現できる。

【0227】実施例4

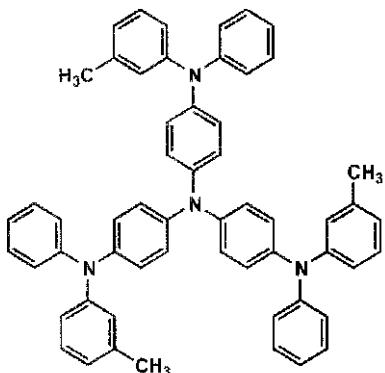
電子輸送層としての評価

陽極として一方の表面にITOを100nm製膜した透明ガラス基板(ミクロ技術研究所製、表面抵抗300Ω)を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一

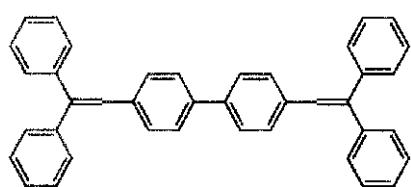
方、モリブデン製抵抗加熱ポートに、m-MTDATAを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにDPVBiを200mg入れ、また別のモリブデン製抵抗加熱ポートにBCを200mg入れ真空蒸着装置に取付けた。

【0228】

【化68】
m-MTDATA



DPVBi



【0229】次いで、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、m-MTDATAの入った前記加熱ポートに通電して、220まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/secで透明支持基板に膜厚40nmで蒸着し、さらに、DPVBiの入った前記加熱ポートに通電して、220まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/secで膜厚40nmで蒸着し、発光層を設けた。^{*}

*着時の基板温度は室温であった。

【0230】ついで、BCの入った前記加熱ポートに通電して、220まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/secで膜厚20nmの電子輸送層を設けた。

【0231】次に、真空槽をあけ、電子輸送層の上にステンレス鋼製の長方形穴あきマスクを設置し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートにマグネシウム3gを入れ、タングステン製の蒸着用バスケットに銀を0.5g入れ、再び真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧した後、マグ

10 ネシウム入りのポートに通電して蒸着速度1.5~2.0nm/secでマグネシウムを蒸着し、この際、同時に銀のバスケットを加熱し、蒸着速度0.1nm/secで銀を蒸着し、前記マグネシウムと銀との混合物から成る陰極とすることにより、比較用有機EL素子OLED4-1を作製した。

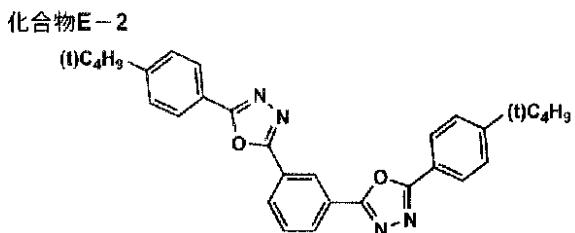
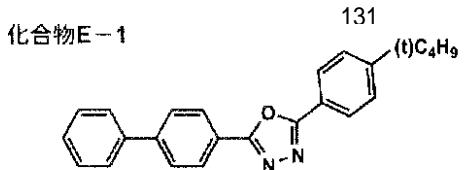
【0232】上記有機EL素子OLED4-1の電子輸送材料であるBCを表3に記載の化合物に替えた以外は有機EL素子OLED4-1と同様にして、有機EL素子OLED4-2~OLED4-16を作製した。これ

20 らの素子を温度23度、乾燥窒素ガス雰囲気下で15V直流電圧印加による連続点灯を行い、点灯開始時の発光輝度(cd/m²)、輝度の半減する時間及び発光効率(ルーメン/W)を測定した。発光輝度は有機EL素子OLED4-1の輝度を100とした時の相対値で表し、輝度の半減する時間は有機EL素子OLED4-1の輝度が半減する時間を100とした相対値で表し、発光効率は有機EL素子OLED4-1の発光効率を100とした相対値で表した。結果を表3に示す。発光色は青色であった。

30 【0233】

【表3】

No.	電子輸送材料	発光輝度 (相対値)	輝度の半減時間 (相対値)	発光効率 (相対値)	備考
OLED4-1	BC	100	100	100	比較例
OLED4-2	E-1	98	104	89	比較例
OLED4-3	E-2	87	108	97	比較例
OLED4-4	L-6	101	115	120	比較例
OLED4-5	L-7	105	104	115	比較例
OLED4-6	L-8	106	103	109	比較例
OLED4-7	(I)-23	151	148	150	本発明
OLED4-8	(I)-42	159	156	147	本発明
OLED4-9	(I)-67	162	155	149	本発明
OLED4-10	(I)-95	155	162	152	本発明
OLED4-11	(I)-126	160	160	156	本発明
OLED4-12	(II)-5	153	158	148	本発明
OLED4-13	(II)-24	150	152	149	本発明
OLED4-14	(II)-43	149	163	155	本発明
OLED4-15	(II)-78	160	162	149	本発明
OLED4-16	(II)-103	163	167	156	本発明



【0235】表3より、本発明の化合物を用いた有機EL素子は、点灯開始時の発光輝度、輝度の半減する時間及び発光効率が改善されているのが分かる。

【0236】実施例5

陰極バッファー層との積層

実施例1で作製した有機EL素子OLED1-16の陰極をA1に置き換え、電子輸送層と陰極の間にフッ化リチウムを膜厚0.5nm蒸着して陰極バッファー層を設けた以外は同様にして有機EL素子(OLED5-1)を作製した。

【0237】実施例1と同様に点灯開始時の発光輝度(cd/m²)、発光効率(ルーメン/W)および輝度の半減する時間を測定したところ、有機EL素子OLED1-15との相対比較で、発光輝度231、発光効率205、輝度の半減する時間275となった。また、有機EL素子OLED1-6~1-14についても、同様に、陰極バッファー層を導入するとさらに効果的であった。

【0238】実施例6

色変換層を有する表示装置

実施例1で作製した有機EL素子OLED1-15の、陰極をA1、陰極バッファー層をLiFに置き換えた以外は、同様の方法により、有機EL素子OLED6-1を作製した。

【0239】無機蛍光体を用いた色変換フィルターの作製 平均粒径5nmのエアロジル0.16gにエタノール15g及び-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン0.22gを加えて開放系室温下1時間攪拌した。この混合物と(RL-12)20gとを乳鉢に移し、よくすり混ぜた後、70°のオーブンで2時間、さらに120°のオーブンで2時間加熱し、表面改質した(RL-12)を得た。

【0240】また、同様にして、(GL-10)と(BL-3)の表面改質も行った。上記の表面改質を施した(RL-12)10gに、トルエン/エタノール=1/1の混合溶液(300g)に溶解したブチラール樹脂(エスレックBX-1)30gを加え、攪拌した後、Wet膜厚200μmでガラス上に塗布した。得られた塗布済みガラスを100°のオーブンで4時間加熱乾燥

し、ガラス上に色変換層が形成された赤色変換フィルター(F-1)を作製した。

【0241】また、これと同じ方法で(GL-10)を塗設した緑色変換フィルター(F-2)及び(BL-3)を塗設した青色変換フィルター(F-3)を作製した。

【0242】続いて、有機EL素子OLED6-1の透明基板の下側に、色変換部として青色変換フィルター(F-3)をストライプ状に貼り付けた。本実施例の有機エレクトロルミネッセンス素子は、以下のような構成である。

【0243】

色変換部/透明基板/陽極/有機化合物薄膜/陰極
この素子に15Vの電圧を印加したところ、320cd/m²鮮明な青色の発光が得られた。発光スペクトルの極大発光波長は448nm、CIE色度座標上で、(0.15, 0.06)となった。

【0244】さらに、上記色変換部の青色変換フィルター(F-3)を、緑色変換フィルター(F-2)または赤色変換フィルター(F-1)に代えた有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。その結果、緑色変換フィルター(F-2)を設けた有機エレクトロルミネッセンス素子からは、250cd/m²、極大発光波長532nm、CIE色度座標上(0.24, 0.63)の緑色光が、赤色変換フィルター(F-1)を設けた有機エレクトロルミネッセンス素子からは、170cd/m²、極大発光波長615nm、CIE色度座標上(0.63, 0.33)の赤色光が、それぞれ得られた。

【0245】上記、青色光、緑色光及び赤色光の発光輝度は、いずれも特許第2795932号の実施例に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光輝度より優れたものである。

【0246】また、以下のような色変換部の位置を透明基板の上側に変更した以下の層構成の有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

【0247】

透明基板/色変換部/陽極/有機化合物薄膜/陰極
この場合も、上記青、緑、赤色とほぼ同様の極大発光波長、CIE色度座標の発光スペクトルが得られた。

【0248】実施例7

フルカラー表示装置

図2の複数の画素3を有する表示部Aにおいて、複数の画素3が備えている複数の有機エレクトロルミネッセンス素子をすべて、実施例6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子(OLED6-1)とした表示装置を作製した。この時点で表示装置に電圧を印加すると、すべての画素3から青紫色の発光が得られた。

【0249】次に、実施例6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子(図5(a))及びこれとは透明基板

と色変換層の位置が異なる有機エレクトロルミネッセンス素子(図5(b))を作製した。図5は、色変換層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子を厚さ方向から見た断面図である。図5(a)において有機エレクトロルミネッセンス素子10は、ガラス製の透明基板10dの上側に有機EL部Yを、下側に色変換部Xを積層している。

【0250】図中、参照符号の10aはA1製の陰極、10bは発光層を含む有機化合物薄膜、10cは陽極(ITO透明電極)、10dは透明基板、10eは実施例6で作製した赤色変換フィルター(F-1)、緑色変換フィルター(F-2)、青色変換フィルター(F-3)をストライプ状に並置した色変換層である。

【0251】陰極10a及び透明電極10cを介して有機化合物薄膜10bに電流が供給されると電流量に応じて発光した。このときの発光は、図中の下側方向へ取り出した。そして、発光した光は透明基板10dを介して色変換層10eに吸収され、色変換層が赤色変換能を有する場合(赤色変換フィルター(F-1)部分)には赤領域の、緑色変換能(緑色変換フィルター(F-2)部分)を有する場合には緑領域の、青色変換能を有する場合(青色変換フィルター(F-3)部分)には青領域の色の発光を、図中白矢印のような方向に取り出すことができた。

【0252】図5(b)に示すように、透明基板10dの上側に色変換部Xと有機EL部Yをこの順序で積層した場合でも、図5(a)の場合と同様に、赤色、緑色及び青色の発光が得られた該表示装置を駆動することにより、輝度の高い鮮明なフルカラー動画表示が得られた。

【0253】

【発明の効果】本発明の化合物により、発光輝度・寿命*

*に優れた有機EL素子を提供できた。また、発光輝度・寿命に優れた青~青紫色に発光する有機EL素子を提供できた。

【図面の簡単な説明】

【図1】有機エレクトロルミネッセンス素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

【図2】表示部の模式図である。

【図3】画素の模式図である。

【図4】パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。

【図5】色変換層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子を厚さ方向から見た断面図である。

【符号の説明】

1 ディスプレイ

3 画素

5 走査線

6 データ線

7 電源ライン

10 有機エレクトロルミネッセンス素子

10a 陰極

10b 有機化合物薄膜

10c 透明電極

10d 透明基板

10e 色変換層

11 スイッチングトランジスタ

12 駆動トランジスタ

13 コンデンサ

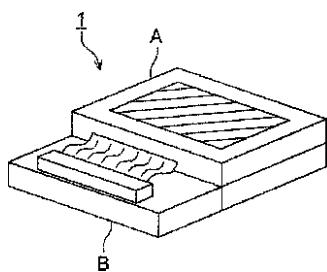
A 表示部

B 制御部

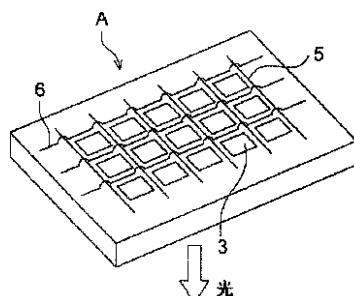
30 X 色変換部

Y 有機EL部

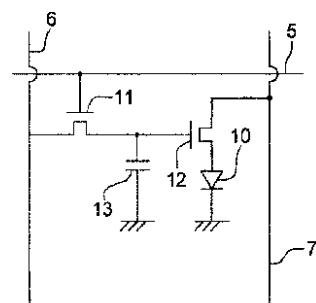
【図1】



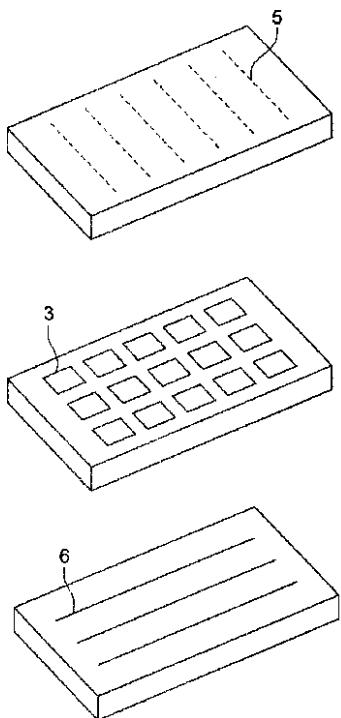
【図2】



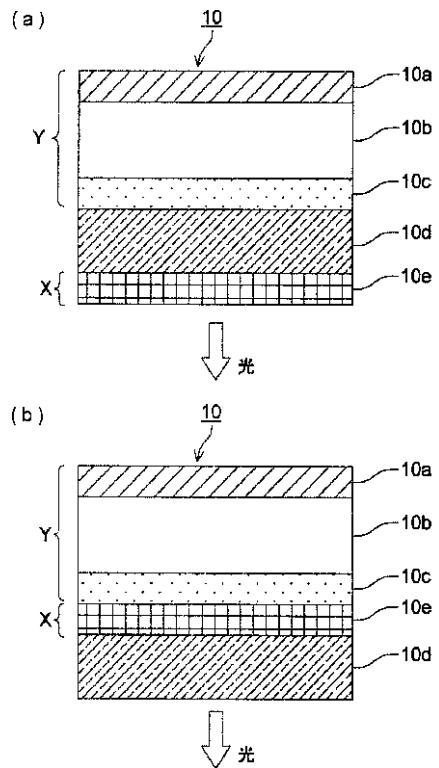
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(51) Int.CI.⁷

H 0 5 B 33/22

識別記号

F I

テ-マコ-ド (参考)

H 0 5 B 33/22

B

(72) 発明者 北 弘志

東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会
社内

F ターム(参考) 3K007 AB02 AB04 AB11 BA06 CA01

CB01 DA01 DB03 EB00

专利名称(译)	有机电致发光元件材料，有机电致发光元件和使用其的显示装置		
公开(公告)号	JP2003142267A	公开(公告)日	2003-05-16
申请号	JP2001353126	申请日	2001-11-19
[标]申请(专利权)人(译)	柯尼卡株式会社		
申请(专利权)人(译)	柯尼卡公司		
[标]发明人	植田則子 山田岳俊 硯里善幸 北弘志		
发明人	植田 則子 山田 岳俊 硯里 善幸 北 弘志		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 H05B33/12 H05B33/14 H05B33/22		
FI分类号	H05B33/14.B C09K11/06.610 C09K11/06.650 C09K11/06.660 H05B33/12.E H05B33/22.B		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB04 3K007/AB11 3K007/BA06 3K007/CA01 3K007/CB01 3K007/DA01 3K007/DB03 3K007/EB00 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/CC06 3K107/CC14 3K107/CC21 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD64 3K107/DD67 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/DD74 3K107/DD75 3K107/DD78 3K107/EE24 3K107/FF13		
优先权	2001254073 2001-08-24 JP		
其他公开文献	JP3873720B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：提供一种发光亮度和寿命优异的有机电致发光元件，特别是提供一种发光亮度和寿命优异且发出蓝色至紫色的有机电致发光元件。施加电场时发光的有机电致发光元件，其特征在于，含有下述通式 **——通式(1)**
 (1) 表示的有机化合物，有机电致发光元件，有机电致发光元件材料，以及显示设备。 [化学1]

