

(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2008-305996

(P2008-305996A)

(43) 公開日 平成20年12月18日(2008.12.18)

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)
H O 1 L 51/50 (2006.01)		H O 5 B 33/22	D	3 K 1 0 7
C O 9 K 11/06 (2006.01)		H O 5 B 33/14	B	4 J 0 3 4
C O 8 G 18/38 (2006.01)		C O 9 K 11/06	6 9 0	
		C O 8 G 18/38	Z	

審査請求 未請求 請求項の数 14 O L (全 40 頁)

(21) 出願番号	特願2007-151983 (P2007-151983)	(71) 出願人	000005496
(22) 出願日	平成19年6月7日(2007.6.7)		富士ゼロックス株式会社
			東京都港区赤坂九丁目7番3号
		(74) 代理人	100079049
			弁理士 中島 淳
		(74) 代理人	100084995
			弁理士 加藤 和詳
		(74) 代理人	100085279
			弁理士 西元 勝一
		(74) 代理人	100099025
			弁理士 福田 浩志
		(72) 発明者	米山 博人
			神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロックス株式会社内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子及び表示装置

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】高い輝度を有し、安定性及び耐久性に優れ、且つ大面積化可能であり製造容易な有機電界発光素子及び表示装置を提供。

【解決手段】有機化合物層が、発光層を含む1以上の層からなり、有機化合物層の少なくとも一層が、電荷輸送性ポリウレタンの少なくとも1種を含み、バッファ層が、前記電荷輸送性ポリウレタンを含有する層の少なくとも一層及び陽極と接して設けられ、無機酸化物、無機窒化物、及び無機酸窒化物から選択された少なくとも1種の電荷注入材料を含有する有機電界発光素子。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも一方が透明又は半透明である一対の陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極間に挟まれたバッファ層及び有機化合物層と、を有し、

前記有機化合物層が、少なくとも発光層を含む 1 以上の層からなり、

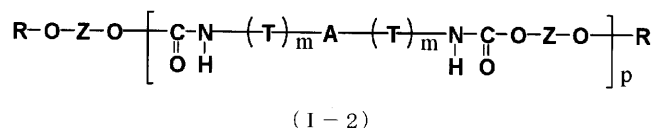
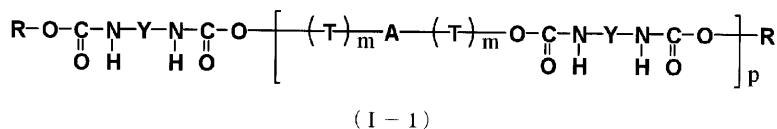
前記有機化合物層の少なくとも一層が、少なくとも 1 種の電荷輸送性ポリウレタンを含有し、前記電荷輸送性ポリウレタンが下記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンの少なくとも 1 種であり、

前記電荷輸送性ポリウレタンを含有する層の少なくとも一層が、前記バッファ層と接して設けられ、

前記バッファ層が、前記陽極と接して設けられ、且つ 1 種以上の電荷注入材料を含有し、前記電荷注入材料が無機酸化物、無機窒化物、及び無機酸窒化物から選択された少なくとも 1 種の無機材料であることを特徴とする有機電界発光素子。

10

【化 1】

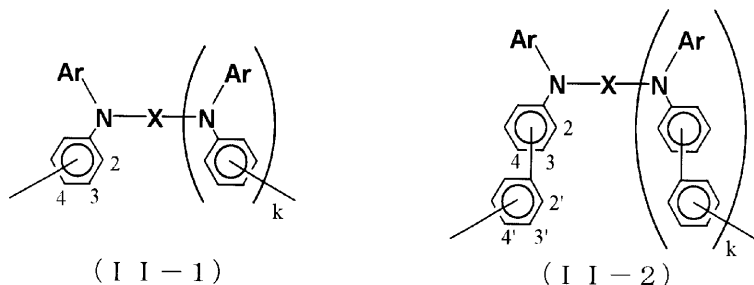


20

(一般式 (I - 1) 及び (I - 2) 中、A は下記一般式 (II - 1) 及び (II - 2) で示される構造から選択される少なくとも 1 種を表し、R は水素原子、アルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、又は、置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、T は炭素数 1 乃至 6 の 2 価の直鎖状炭化水素又は炭素数 2 乃至 10 の 2 価の分枝状炭化水素を表し、Y は 2 価のジイソシアネート残基又は 2 価のアミン残基を表し、Z は 2 価のアルコール残基又は 2 価のビスクロロホルメート残基を表し、m は 0 又は 1 を表し、p は 5 乃至 5,000 の整数を表す。ここで示す残基とは、連結化合物の反応性基を除いた部分のことをいう。)

30

【化 2】



40

(一般式 (II - 1) 及び (II - 2) 中、Ar は置換もしくは未置換の 1 価の芳香族基を表し、X は置換もしくは未置換の 2 価の芳香族基を表し、k は 0 又は 1 を表す。)

【請求項 2】

前記バッファ層が、酸化モリブデン及び酸化バナジウムのいずれか、又は両方を含有して構成されることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 3】

上記一般式 (II - 1) 及び (II - 2) における前記 Ar が、ベンゼン、ビフェニル

50

、ナフタレン、及び、フルオレンから選ばれる 1 価の芳香族基であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 4】

上記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) における前記 T が、 $-(CH_2)_2-$ 、 $-(CH_2)_3-$ 、又は、 $-(CH_2)_4-$ であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 5】

前記バッファ層の膜厚が、1 nm 以上 15 nm 以下であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 6】

前記有機化合物層が、少なくとも前記発光層及び電子輸送層から構成され、少なくとも前記発光層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンを少なくとも 1 種含有し、前記陽極と前記発光層との間に、前記バッファ層を設けたことを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

10

【請求項 7】

前記発光層が、前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を含むことを特徴とする請求項 6 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 8】

前記有機化合物層が、少なくとも正孔輸送層、前記発光層、及び、電子輸送層から構成され、少なくとも前記正孔輸送層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンを少なくとも 1 種含有し、前記陽極と前記正孔輸送層との間に、前記バッファ層を設けたことを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

20

【請求項 9】

前記発光層が、前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を含むことを特徴とする請求項 8 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 10】

前記有機化合物層が、少なくとも正孔輸送層及び前記発光層から構成され、少なくとも前記正孔輸送層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンを少なくとも 1 種含有し、前記陽極と前記正孔輸送層との間に、前記バッファ層を設けたことを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

30

【請求項 11】

前記発光層が、前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を含むことを特徴とする請求項 10 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 12】

前記有機化合物層が、前記発光層のみから構成され、前記発光層が電荷輸送能を有する発光層であり、前記電荷輸送能を有する発光層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンを少なくとも 1 種含有し、前記陽極と前記電荷輸送能を有する発光層との間に、前記バッファ層を設けたことを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

40

【請求項 13】

前記電荷輸送能を有する発光層が、前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を含むことを特徴とする請求項 12 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 14】

マトリックス状に配置された有機電界発光素子と、前記有機電界発光素子を駆動させるための駆動手段と、を有し、

前記有機電界発光素子が、少なくとも一方が透明又は半透明である一対の陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極間に挟まれたバッファ層及び有機化合物層と、を有し、

前記有機化合物層が、少なくとも発光層を含む 1 以上の層からなり、

前記有機化合物層の少なくとも一層が、少なくとも 1 種の電荷輸送性ポリウレタンを含有し、前記電荷輸送性ポリウレタンが下記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電

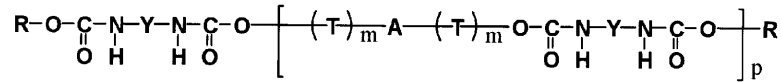
50

荷輸送性ポリウレタンの少なくとも１種であり、

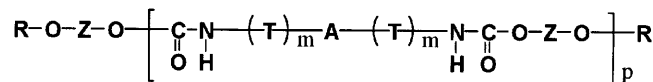
前記電荷輸送性ポリウレタンを含有する層の少なくとも一層が、前記バッファ層と接して設けられ、

前記バッファ層が、前記陽極と接して設けられ、且つ１種以上の電荷注入材料を含有し、前記電荷注入材料が無機酸化物、無機窒化物、及び無機酸窒化物から選択された少なくとも１種の無機材料であることを特徴とする表示装置。

【化３】



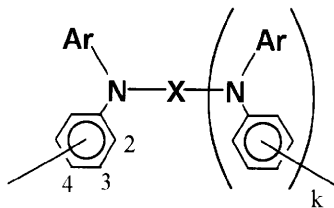
(I-1)



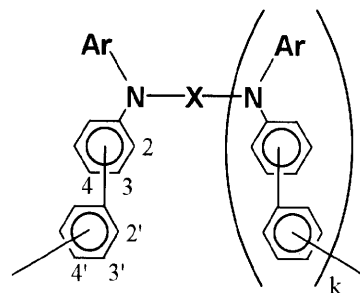
(I-2)

(一般式(I-1)及び(I-2)中、Aは下記一般式(II-1)及び(II-2)で示される構造から選択される少なくとも１種を表し、Rは水素原子、アルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、又は、置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、Tは炭素数１乃至６の２価の直鎖状炭化水素又は炭素数２乃至１０の２価の分枝状炭化水素を表し、Yは２価のジイソシアネート残基又は２価のアミン残基を表し、Zは２価のアルコール残基又は２価のビスクロロホルメート残基を表し、mは０又は１を表し、pは５乃至５，０００の整数を表す。ここで示す残基とは、連結化合物の反応性基を除いた部分のことをいう。)

【化４】



(II-1)



(II-2)

(一般式(II-1)及び(II-2)中、Arは置換もしくは未置換の１価の芳香族基を表し、Xは置換もしくは未置換の２価の芳香族基を表し、kは０又は１を表す。)

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明は、有機電界発光素子（以下、「有機EL素子」という）及び表示装置に関する。

【背景技術】

【０００２】

電界発光素子（以下、「EL素子」と記述する）は、自発光性の全固体素子であり、視認

10

20

30

40

50

性が高く衝撃にも強いいため、広く応用が期待されている。現在は無機蛍光体を用いたものが主流である。

【 0 0 0 3 】

一方、有機化合物（例えばアントラセン等）を用いたEL素子研究も行われており、単結晶を用いた研究の他、蒸着法による薄膜化が試みられている（Thin Solid Films, Vol.94, 171 (1982)）。

【 0 0 0 4 】

また近年、正孔輸送性有機低分子化合物と電子輸送能を持つ蛍光性有機低分子化合物の薄膜を真空蒸着法により順次積層した機能分離型のEL素子において、10V程度の低電圧で1000cd/m²以上の高輝度が得られるものが報告されており（Applied Physics Letter, Vol. 51, 913 (1987)）、以来、積層型のEL素子の研究・開発が活発に行われている。

これら積層型の素子は、電極から電荷輸送性の有機化合物からなる電荷輸送層を介して正孔と電子のキャリアバランスを保ちながら蛍光性有機化合物からなる発光層に注入され、発光層中に閉じ込められた正孔と電子が再結合することにより高輝度の発光を実現している。

【 0 0 0 5 】

また、駆動時におけるジュール熱の発生を抑えるために、正孔輸送性材料として安定なアモルファスガラス状態が得られるスターバーストアミンを用いたり（第40回応用物理学関係連合講演会予稿集30 a -SZK-14(1993)など）、ポリフォスファゼンの側鎖にトリフェニルアミンを導入したポリマーを用いたり（第42回高分子討論会予稿集20 J 21(1993)）したEL素子が報告されている。

【 0 0 0 6 】

また、工程を短縮できる単層構造の有機EL素子について研究・開発が進められ、ポリ（p-フェニレンビニレン）等の導電性高分子を用いた素子（Nature, Vol.357, 477(1992)など）や、正孔輸送性ポリビニルカルバゾール中に電子輸送性材料と蛍光色素を混入した（第38回応用物理学関係連合講演会予稿集31p-g-12(1991)）素子が提案されている。

【 0 0 0 7 】

また、作製法という観点から、製造の簡略化、加工性、大面積化、コスト等の観点から湿式による塗布方式が検討されており、キャストリング法によっても素子が得られることが報告されている（第50回応用物理学会学術講演予稿集, 29p-ZP-5(1989)、第51回応用物理学会学術講演予稿集, 28 a -PB-7(1990)）。

【非特許文献1】Thin Solid Films, Vol.94, 171 (1982)

【非特許文献2】Applied Physics Letter, Vol.51, 913 (1987)

【非特許文献3】第40回応用物理学関係連合講演会予稿集30 a -SZK-14(1993)

【非特許文献4】第42回高分子討論会予稿集20 J 21(1993)

【非特許文献5】Nature, Vol.357, 477(1992)

【非特許文献6】第38回応用物理学関係連合講演会予稿集31p-g-12(1991)

【非特許文献7】第50回応用物理学会学術講演予稿集, 29p-ZP-5(1989)

【非特許文献8】第51回応用物理学会学術講演予稿集, 28 a -PB-7(1990)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 8 】

本発明は、高い輝度を有し、安定性及び耐久性に優れ、且つ大面積化可能であり製造容易な有機電界発光素子及び表示装置を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 0 9 】

上記課題は、以下の手段により解決される。即ち、

請求項1に係る発明は、

少なくとも一方が透明又は半透明である一対の陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極間に挟まれたバッファ層及び有機化合物層と、を有し、

10

20

30

40

50

前記有機化合物層が、少なくとも発光層を含む 1 以上の層からなり、

前記有機化合物層の少なくとも一層が、少なくとも 1 種の電荷輸送性ポリウレタンを含有し、前記電荷輸送性ポリウレタンが下記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンの少なくとも 1 種であり、

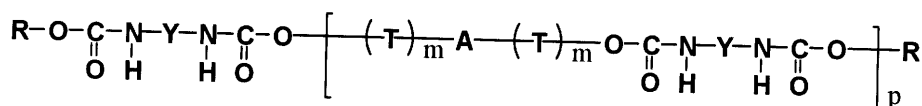
前記電荷輸送性ポリウレタンを含有する層の少なくとも一層が、前記バッファ層と接して設けられ、

前記バッファ層が、前記陽極と接して設けられ、且つ 1 種以上の電荷注入材料を含有し、前記電荷注入材料が無機酸化物、無機窒化物、及び無機酸窒化物から選択された少なくとも 1 種の無機材料であることを特徴とする有機電界発光素子である。

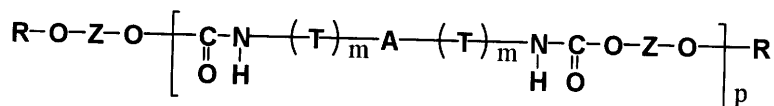
【0010】

10

【化1】



(I - 1)



(I - 2)

20

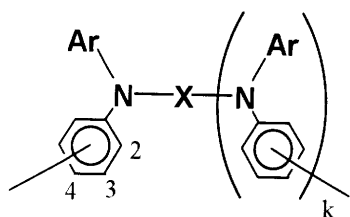
【0011】

ここで、上記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) 中、A は下記一般式 (II - 1) 及び (II - 2) で示される構造から選択される少なくとも 1 種を表し、R は水素原子、アルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、又は、置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、T は炭素数 1 乃至 6 の 2 価の直鎖状炭化水素又は炭素数 2 乃至 10 の 2 価の分枝状炭化水素を表し、Y は 2 価のジイソシアネート残基又は 2 価のアミン残基を表し、Z は 2 価のアルコール残基又は 2 価のビスクロロホルメート残基を表し、m は 0 又は 1 を表し、p は 5 乃至 5, 000 の整数を表す。ここで示す残基とは、連結化合物の反応性基を除いた部分のことをいう。

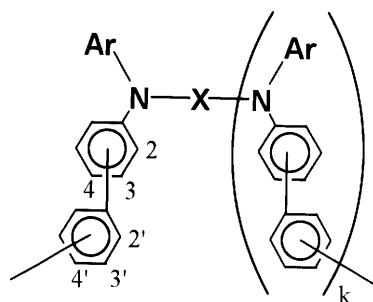
30

【0012】

【化2】



(II - 1)



(II - 2)

40

【0013】

ここで、上記一般式 (II - 1) 及び (II - 2) 中、Ar は置換もしくは未置換の 1 価の芳香族基を表し、X は置換もしくは未置換の 2 価の芳香族基を表し、k は 0 又は 1 を表す。

【0014】

請求項 2 に係る発明は、

前記バッファ層が、酸化モリブデン及び酸化バナジウムのいずれか、又は両方を含有し

50

て構成されることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

【0015】

請求項 3 に係る発明は、

上記一般式 (I I - 1) 及び (I I - 2) における前記 Ar が、ベンゼン、ピフェニル、ナフタレン、及び、フルオレンから選ばれる 1 価の芳香族基であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

【0016】

請求項 4 に係る発明は、

上記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) における前記 T が、 $-(CH_2)_2-$ 、 $-(CH_2)_3-$ 、又は、 $-(CH_2)_4-$ であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

10

【0017】

請求項 5 に係る発明は、

前記バッファ層の膜厚が、1 nm 以上 15 nm 以下であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

【0018】

請求項 6 に係る発明は、

前記有機化合物層が、少なくとも前記発光層及び電子輸送層から構成され、少なくとも前記発光層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンを少なくとも 1 種含有し、前記陽極と前記発光層との間に、前記バッファ層を設けたことを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

20

【0019】

請求項 7 に係る発明は、

前記発光層が、前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を含むことを特徴とする請求項 6 に記載の有機電界発光素子である。

【0020】

請求項 8 に係る発明は、

前記有機化合物層が、少なくとも正孔輸送層、前記発光層、及び、電子輸送層から構成され、少なくとも前記正孔輸送層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンを少なくとも 1 種含有し、前記陽極と前記正孔輸送層との間に、前記バッファ層を設けたことを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

30

【0021】

請求項 9 に係る発明は、

前記発光層が、前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を含むことを特徴とする請求項 8 に記載の有機電界発光素子である。

【0022】

請求項 10 に係る発明は、

前記有機化合物層が、少なくとも正孔輸送層及び前記発光層から構成され、少なくとも前記正孔輸送層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンを少なくとも 1 種含有し、前記陽極と前記正孔輸送層との間に、前記バッファ層を設けたことを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

40

【0023】

請求項 11 に係る発明は、

前記発光層が、前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を含むことを特徴とする請求項 10 に記載の有機電界発光素子である。

【0024】

請求項 12 に係る発明は、

前記有機化合物層が、前記発光層のみから構成され、前記発光層が電荷輸送能を有する発光層であり、前記電荷輸送能を有する発光層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンを少なくとも 1 種含有し、前記陽極と前記電荷輸送能

50

を有する発光層との間に、前記バッファ層を設けたことを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

【 0 0 2 5 】

請求項 1 3 に係る発明は、

前記電荷輸送能を有する発光層が、前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を含むことを特徴とする請求項 1 2 に記載の有機電界発光素子である。

【 0 0 2 6 】

請求項 1 4 に係る発明は、

マトリックス状に配置された有機電界発光素子と、前記有機電界発光素子を駆動させるための駆動手段と、を有し、

前記有機電界発光素子が、少なくとも一方が透明又は半透明である一対の陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極間に挟まれたバッファ層及び有機化合物層と、を有し、

前記有機化合物層が、少なくとも発光層を含む 1 以上の層からなり、

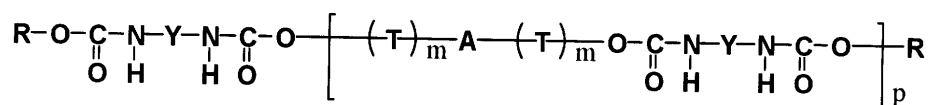
前記有機化合物層の少なくとも一層が、少なくとも 1 種の電荷輸送性ポリウレタンを含有し、前記電荷輸送性ポリウレタンが下記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンの少なくとも 1 種であり、

前記電荷輸送性ポリウレタンを含有する層の少なくとも一層が、前記バッファ層と接して設けられ、

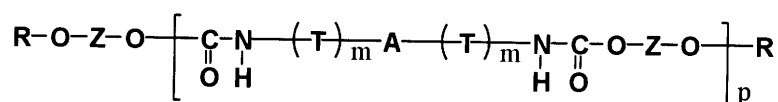
前記バッファ層が、前記陽極と接して設けられ、且つ 1 種以上の電荷注入材料を含有し、前記電荷注入材料が無機酸化物、無機窒化物、及び無機酸窒化物から選択された少なくとも 1 種の無機材料であることを特徴とする表示装置である。

【 0 0 2 7 】

【 化 3 】



(I - 1)



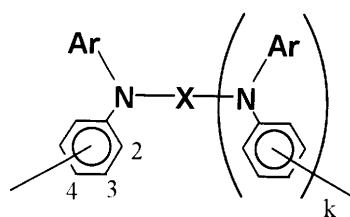
(I - 2)

【 0 0 2 8 】

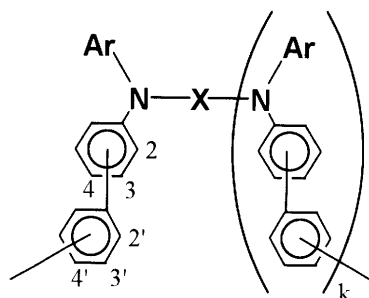
ここで、上記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) 中、A は下記一般式 (I I - 1) 及び (I I - 2) で示される構造から選択される少なくとも 1 種を表し、R は水素原子、アルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、又は、置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、T は炭素数 1 乃至 6 の 2 価の直鎖状炭化水素又は炭素数 2 乃至 10 の 2 価の分枝状炭化水素を表し、Y は 2 価のジイソシアネート残基又は 2 価のアミン残基を表し、Z は 2 価のアルコール残基又は 2 価のビスクロロホルメート残基を表し、m は 0 又は 1 を表し、p は 5 乃至 5 , 0 0 0 の整数を表す。ここで示す残基とは、連結化合物の反応性基を除いた部分のことをいう。

【 0 0 2 9 】

【化 4】



(I I - 1)



(I I - 2)

10

【 0 0 3 0 】

ここで、上記一般式 (I I - 1) 及び (I I - 2) 中、A r は置換もしくは未置換の 1 価の芳香族基を表し、X は置換もしくは未置換の 2 価の芳香族基を表し、k は 0 又は 1 を表す。

【発明の効果】

【 0 0 3 1 】

本発明によれば、本発明で用いられる少なくとも1種の電荷輸送性ポリウレタンが本発明の有機化合物層の少なくとも一層として用いられず、本発明で用いられるバッファ層に無機酸化物、無機窒化物、及び無機酸窒化物から選択された少なくとも1種の無機材料を電荷注入材料として用いない場合に比べ、大面積化及び製造を容易としつつ、高い輝度を有し、安定性及び耐久性に優れた有機電界発光素子を提供できる、といった効果を奏する。

20

【発明を実施するための最良の形態】

【 0 0 3 2 】

以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

【 0 0 3 3 】

本実施の形態に係る有機電界発光素子は、少なくとも一方が透明又は半透明（ここで、透明又は半透明とは、可視光の透過率が50%以上であることを意味する。以下同様である。）である一対の陽極及び陰極と、前記陽極及び陰極間に挟まれたバッファ層及び有機化合物層と、を有している。

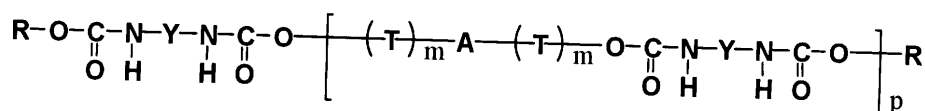
30

【 0 0 3 4 】

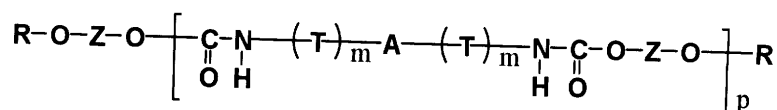
有機化合物層は、少なくとも発光層を含む１以上の層からなっている。また有機化合物層の少なくとも一層は、下記一般式（Ⅰ－１）及び（Ⅰ－２）で示される電荷輸送性ポリウレタンを、少なくとも１種含有する。

【 0 0 3 5 】

【化 5】



(I - 1)



(I - 2)

40

50

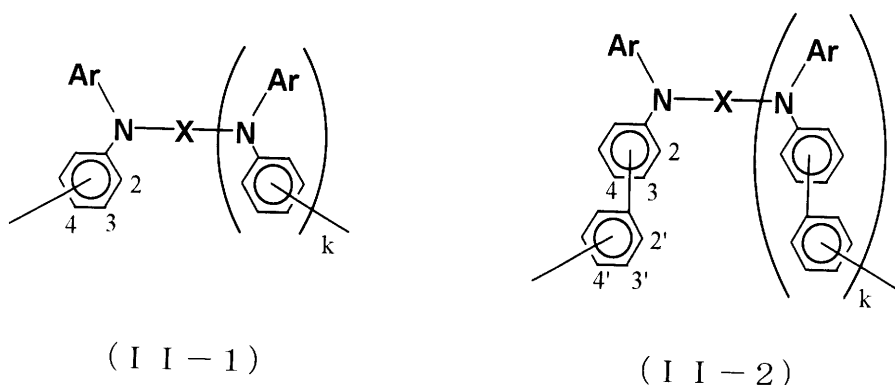
【 0 0 3 6 】

ここで、上記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) 中、A は下記一般式 (I I - 1) 及び (I I - 2) で示される構造から選択される少なくとも 1 種を表し、R は水素原子、アルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、又は、置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、T は炭素数 1 乃至 6 の 2 価の直鎖状炭化水素又は炭素数 2 乃至 10 の 2 価の分枝状炭化水素を表し、Y は 2 価のジイソシアネート残基又は 2 価のアミン残基を表し、Z は 2 価のアルコール残基又は 2 価のビスクロロホルメート残基を表し、m は 0 又は 1 を表し、p は 5 乃至 5 , 0 0 0 の整数を表す。ここで示す残基とは、連結化合物の反応性基を除いた部分のことをいう。

【 0 0 3 7 】

10

【 化 6 】



20

【 0 0 3 8 】

ここで、上記一般式 (I I - 1) 及び (I I - 2) 中、A r は置換もしくは未置換の 1 価の芳香族基を表し、X は置換もしくは未置換の 2 価の芳香族基を表し、k は 0 又は 1 を表す。

【 0 0 3 9 】

上記電荷輸送性ポリウレタンを含有する層の少なくとも一層は、バッファ層と接して設けられている。またバッファ層は、陽極とも接して設けられている。

30

【 0 0 4 0 】

バッファ層は、1 種以上の電荷注入材料を含有し、電荷注入材料は、無機酸化物、無機窒化物、及び無機酸窒化物から選択された少なくとも 1 種の無機材料であることを特徴としている。

【 0 0 4 1 】

上記組成及び構成とする事により、有機電界発光素子の輝度、安定性、及び耐久性を向上させることができる。

上記組成及び構成により、有機電界発光素子の輝度、安定性、及び耐久性が向上する理由は定かではないが、バッファ層の電荷注入材料が陽極—有機化合物層間のエネルギー障壁を低下させることにより電荷注入性が上がると共に、陽極—バッファ層間の密着性が良いだけでなく、上記特定の電荷輸送性ポリウレタンを含む有機化合物層—バッファ層間の密着性も良くなるため、輝度安定性、及び耐久性が向上すると推測される。

40

加えて、有機化合物層に含まれる上記特定の電荷輸送性ポリウレタンが、合成容易であり、平均分子量及び分子量分布等の制御が容易であるため、例えば平均分子量の高いポリウレタンを用いて末端基によるキャリアトラップ数を減少させることなどにより、有機電界発光素子の輝度、安定性、及び耐久性を高くできると推測される。

また発光層等の主な機能層に有機材料を用いることにより、大面積化及び製造が容易となる。

【 0 0 4 2 】

以下、それぞれの層について説明する。

50

【 0 0 4 3 】

[1] バッファ層

バッファ層に含まれる電荷注入材料は、無機酸化物、無機窒化物、及び無機酸窒化物から選択された少なくとも１種の無機材料であることを特徴としている。

【 0 0 4 4 】

無機酸化物の例としては、例えば、希土類元素を含む遷移金属、アルミニウム、珪素、亜鉛、ガリウム、ゲルマニウム、カドミウム、インジウム、錫、アンチモン、タリウム、鉛、ビスマス等の酸化物、及びこれらの複合酸化物等を挙げることが出来るが、これに限られるものではない。

【 0 0 4 5 】

無機窒化物の例としては、例えば、ガリウム、インジウム、アルミニウム、マグネシウム、リチウム、マグネシウム、モリブデン、バナジウム、ランタン、クロム、珪素、ホウ素、鉄、銅、亜鉛、バリウム、チタン、イットリウム、カルシウム、タンタル、ジルコニウム、タンタル等の窒化物、及びこれらの複合窒化物等を挙げることが出来るが、これに限られるものではない。

【 0 0 4 6 】

無機酸窒化物の例としては、例えば、 Si_3N_4 （窒化ケイ素）に Al_2O_3 （アルミナ）や SiO_2 （シリカ）などを固溶させて作るサイアロン（ SiAlON ）と呼ばれる酸窒化物や、これにリチウム、カルシウム、バリウム、ランタン、等を含有する複合サイアロンや、その他の無機酸化物、無機窒化物を固溶させた多元サイアロン等を挙げることが出来るが、これに限られるものではない。

【 0 0 4 7 】

これらの無機酸化物・無機窒化物・無機酸窒化物の中でも、酸化モリブデン、酸化バナジウムが望ましい。

【 0 0 4 8 】

バッファ層が酸化モリブデン及び酸化バナジウムのいずれか、又は両方を含有することにより、さらに有機電界発光素子の輝度を向上させることができる。

上記構成により、さらに有機電界発光素子の輝度が向上する理由は定かではないが、酸化モリブデン及び酸化バナジウムは、陽極—有機化合物層間のエネルギー障壁を効率よく低下させるだけでなく、他の物質に比べ可視光の吸収率が低く薄膜化が可能であることにより膜の光透過性が良く、有機電界発光素子の光取り出し効率が向上するためであると推測される。

【 0 0 4 9 】

バッファ層の膜厚は、 1 nm 以上 200 nm 以下が望ましく、 1 nm 以上 15 nm 以下がより望ましく、 5 nm 以上 15 nm 以下がさらに望ましい。

【 0 0 5 0 】

バッファ層の膜厚を上記範囲とする事により、さらに有機電界発光素子の輝度を向上させることができる。

バッファ層の膜厚を上記範囲とする事によりさらに有機電界発光素子の輝度が向上する理由は定かではないが、バッファ層の電荷注入性と光透過性とを両立させることにより、さらに有機電界発光素子の輝度を向上させることができるためであると推測される。

なお、バッファ層の膜厚は膜厚センサーにより測定される。

【 0 0 5 1 】

[2] 有機化合物層

有機化合物層を構成する層のうち少なくとも一層は、上記電荷輸送性ポリウレタンを含有する。以下、上記電荷輸送性ポリウレタンについて詳細に説明する。

【 0 0 5 2 】

電荷輸送性ポリウレタンは、上記一般式（ $\text{I} - 1$ ）及び（ $\text{I} - 2$ ）で示され、上記一般式（ $\text{I} - 1$ ）及び（ $\text{I} - 2$ ）中、 A は上記一般式（ $\text{II} - 1$ ）及び（ $\text{II} - 2$ ）で示される構造から選択される少なくとも１種を表す。

【0053】

上記一般式(II-1)及び(II-2)中のArとして具体的には、例えば、置換もしくは未置換のフェニル基、置換もしくは未置換の1価の多核芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の1価の縮合環芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の1価の芳香族複素環、又は、少なくとも1種の芳香族複素環を含む置換もしくは未置換の1価の芳香族基を表す。

【0054】

なお、当該多核芳香族炭化水素及び縮合環芳香族炭化水素とは、本発明においては、具体的には以下に定義される多環式芳香族のことを意味する。即ち、「多核芳香族炭化水素」とは、炭素と水素とから構成される芳香環が2個以上存在し、これらの芳香環同士が、炭素—炭素の単結合によって結合している炭化水素化合物を表す。また、「縮合環芳香族炭化水素」とは、炭素と水素とから構成される芳香環が2個以上存在し、これらの芳香環同士が、1対の隣接して結合する2以上の炭素原子を共有している炭化水素化合物を表す。

【0055】

多核芳香族炭化水素及び縮合環芳香族炭化水素を構成する芳香環数は特に限定されないが、芳香環数が2乃至10のものが望ましく、2乃至5のものがより望ましい。また、縮合環芳香族炭化水素においては、全縮合環芳香族炭化水素が望ましい。ここで「全縮合環芳香族炭化水素」とは、本発明においては、全ての芳香環が縮合環構造のより連続的に隣接してなる縮合環芳香族炭化水素を表す。

【0056】

多核芳香族炭化水素の具体例としては、例えば、ビフェニル、ターフェニル等が挙げられる。また縮合環芳香族炭化水素の具体例としては、例えば、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、フルオレン等が挙げられる。

【0057】

また芳香族複素環は、本発明においては、炭素と水素以外の元素も含む芳香環を表す。その環骨格を構成する原子数(Nr)は、Nr=5及び/又は6が好ましく用いられる。また環骨格を構成するC以外の元素(異種元素)の種類及び数は特に限定されないが、例えば、S、N、O等が好ましく用いられ、前記環骨格中には2種類以上及び/又は2個以上の異種原子が含まれていてもよい。特に5員環構造を持つ複素環としては、チオフェン、チオフィン及びフランもしくはこれらの3位及び4位の炭素をさらに窒素で置換した複素環、ピロールもしくはこれらの3位及び4位の炭素をさらに窒素で置換した複素環が好ましく用いられ、6員環構造をもつ複素環として、ピリジンが好ましく用いられる。

【0058】

さらに、芳香族複素環を含む芳香族基は、本発明においては、骨格を構成する原子団中に、少なくとも1種の前記芳香族複素環を含む結合基を表す。これらは、すべてが共役系で構成されたもの、或いは少なくとも一部が非共役系で構成されたもののいずれでもよいが、電荷輸送性や発光効率の点で、すべてが共役系で構成されたものが望ましい。

【0059】

Arを表す構造として選択されるベンゼン環、多核芳香族炭化水素、縮合環芳香族炭化水素、複素環、又は芳香族複素環を含む芳香族基の置換基としては、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、フェノキシ基、アリール基、アラルキル基、置換アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。アルキル基としては、炭素数1乃至10のものが好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基等が挙げられる。アルコキシ基としては、炭素数1乃至10のものが好ましく、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基等が挙げられる。アリール基としては、炭素数6乃至20のものが好ましく、例えば、フェニル基、トリル基等が挙げられる。アラルキル基としては、炭素数7乃至20のものが好ましく、例えば、ベンジル基、フェネチル基等が挙げられる。置換アミノ基の置換基としては、アルキル基、アリール基、アラルキル基等が挙げられ、具体例は前述の通りである。

【 0 0 6 0 】

A r は、上記に挙げた具体例のうちベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、及び、フルオレンから選ばれる 1 価の芳香族基であることが望ましい。

A r が上記置換基であることにより、さらに有機電界発光素子の輝度、安定性、及び耐久性を向上させることができる。

A r が上記置換基であることにより有機電界発光素子の輝度、安定性、及び耐久性が向上する理由は定かではないが、バッファ層との密着性が向上するためであると推測される。

【 0 0 6 1 】

上記一般式 (I I - 1) 及び (I I - 2) 中の X として具体的には、例えば、置換もしくは未置換のフェニレン基、又は置換もしくは未置換の芳香環数 2 乃至 10 の 2 価の多核芳香族炭化水素、又は置換もしくは未置換の芳香環数 2 乃至 10 の 2 価の縮合環芳香族炭化水素、又は置換もしくは未置換の 2 価の芳香族複素環、又は少なくとも 1 種の芳香族複素環を含む置換もしくは未置換の 2 価の芳香族基を表す。

ここで、「多核芳香族炭化水素」「縮合環芳香族炭化水素」「芳香族複素環」「芳香族複素環を含む芳香族基」については前述に示す通りである。

【 0 0 6 2 】

上記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) 中、A は上記一般式 (I I - 1) 及び (I I - 2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を表し、一つのポリマー中に構造 A が 2 種類以上含まれてもよい。

【 0 0 6 3 】

一般式 (I - 1) 及び (I - 2) 中、T は炭素数 1 乃至 6 の 2 価の直鎖状炭化水素、又は炭素数 2 乃至 10 の 2 価の分枝鎖状炭化水素基を示し、望ましくは炭素数が 2 乃至 6 の 2 価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数 3 乃至 7 の 2 価の分枝鎖状炭化水素である。

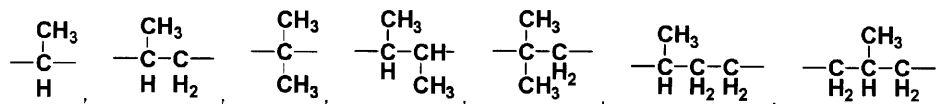
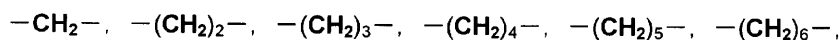
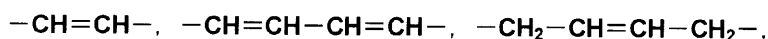
T の具体例としては、例えば以下に示す構造を持つものが挙げられるが、

【 0 0 6 4 】

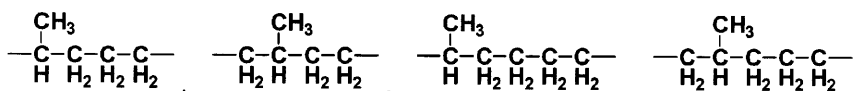
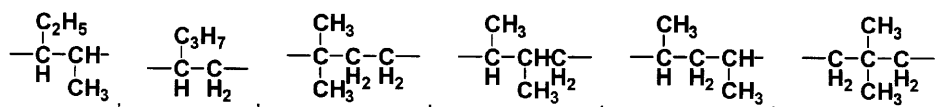
10

20

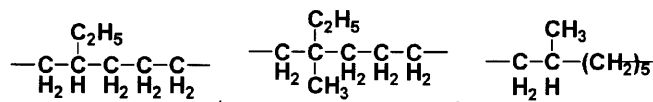
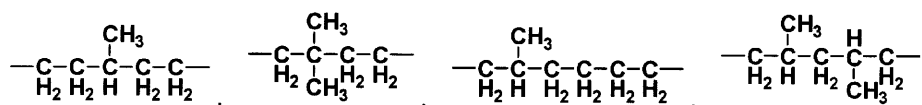
【化 7】



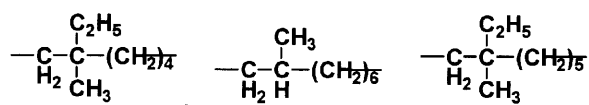
10



20



30



【0065】

Tは上記に挙げた具体例のうち $-(\text{CH}_2)_2-$ 、 $-(\text{CH}_2)_3-$ 、 $-(\text{CH}_2)_4-$ 等が特に望ましい。

40

Tが上記置換基であることにより、さらに有機電界発光素子の輝度、安定性、及び耐久性を向上させることができる。

Tが上記置換基であることにより有機電界発光素子の輝度、安定性、及び耐久性が向上する理由は定かではないが、バッファ層との密着性が向上するためであると推測される。

【0066】

上記一般式(I-1)及び(I-2)中、Rは水素原子、アルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、又は置換もしくは未置換のアラルキル基を表す。アルキル基としては、炭素数1乃至10のものが好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基等が挙げられる。アリール基としては、炭素数6乃至20のものが好ましく、例えば、フェニル基、トリル基等が挙げられる。アラルキル基としては、炭素数7乃至

50

20のものが好ましく、例えば、ベンジル基、フェネチル基等が挙げられる。また、置換アリール基、置換アラルキル基の置換基としては、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、置換アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。

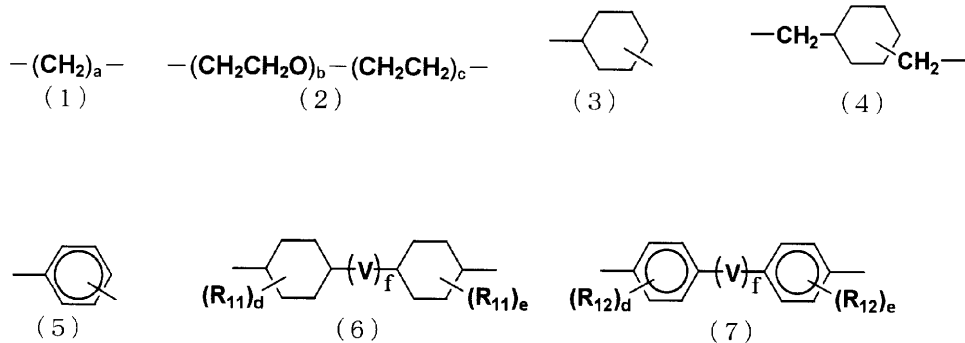
【0067】

上記一般式(I-1)又は(I-2)中、Yは2価のジイソシアネート残基又は2価のアミン残基を表し、Zは2価のアルコール残基又は2価のビスクロロホルレート残基を表す。Y及びZは、具体例としては例えば、下記の式(1)乃至(7)から選択された基が挙げられる。

【0068】

【化8】

10



20

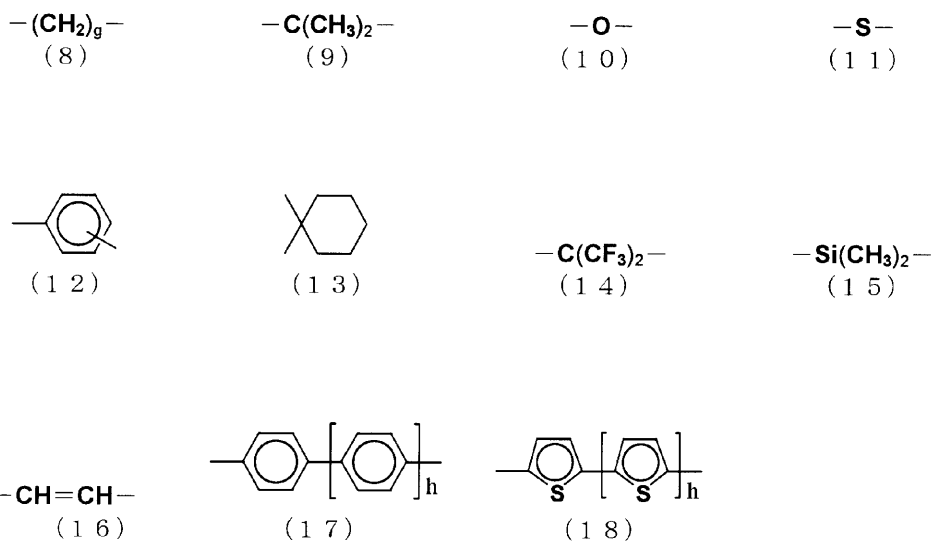
【0069】

上記式(1)乃至(7)中、 R_{11} 及び R_{12} は、それぞれ水素原子、炭素数1乃至4のアルキル基、炭素数1乃至4のアルコキシ基、置換もしくは未置換のフェニル基、置換もしくは未置換のアラルキル基、又はハロゲン原子を表し、a、b、cはそれぞれ1乃至10の整数を意味し、d及びeは、それぞれ0、1又は2の整数を意味し、fはそれぞれ0又は1を意味し、Vは下記の式(8)乃至(18)から選択された基を表す。

【0070】

【化9】

30



40

【0071】

上記式(8)乃至(18)中、gはそれぞれ1乃至10の整数を意味し、hは、それぞれ0乃至10の整数を意味する。

【0072】

50

上記一般式 (I - 1) 又は (I - 2) 中、p は重合度を表わし、5 乃至 5 , 0 0 0 の範囲であるが、望ましくは 1 0 乃至 1 , 0 0 0 の範囲である。

【 0 0 7 3 】

本実施の形態に用いる電荷輸送性ポリウレタンの重量平均分子量 M_w は 5 , 0 0 0 以上 1 , 0 0 0 , 0 0 0 以下の範囲であるが、1 0 , 0 0 0 以上 3 0 0 , 0 0 0 以下の範囲にあるのが望ましい。

【 0 0 7 4 】

電荷輸送性ポリウレタンの重量平均分子量 M_w は、以下の方法により測定することができる。

まず、電荷輸送性ポリウレタンの 1 . 0 質量 % T H F (テトラヒドロフラン) 溶液を調製し、示差屈折率検出器 (R I 、 T O S O H 社製、商品名 : U V - 8 0 2 0) を用いて、ゲル浸透クロマトグラフィー (G P C) により、標準サンプルとしてスチレンポリマーを用いて行う。

10

【 0 0 7 5 】

ここで、一般式 (I - 1) 及び (I - 2) の電荷輸送性ポリウレタンの具体例としては、例えば、特開 2 0 0 2 - 1 1 7 9 8 2 、特開 2 0 0 2 - 1 1 7 9 8 3 などに開示されているものが挙げられる。

【 0 0 7 6 】

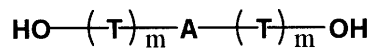
次に、電荷輸送性ポリウレタンの合成方法について説明する。

本実施の形態に用いる電荷輸送性ポリウレタンは、下記一般式 (I I I - 1) 乃至 (I I I - 4) で示される電荷輸送性モノマーを用いて、例えば、第 4 版実験化学講座第 2 8 巻 (丸善、1 9 9 2) 等に記載された公知の方法で重合させることによって合成することができる。

20

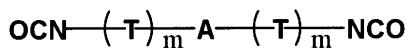
【 0 0 7 7 】

【 化 1 0 】

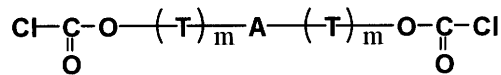


(I I I - 1)

30

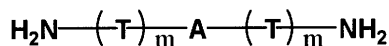


(I I I - 2)



(I I I - 3)

40



(I I I - 4)

【 0 0 7 8 】

なお、上記一般式 (I I I - 1) 乃至 (I I I - 4) 中、A、T、m は、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) における A、T、m と同様である。

【 0 0 7 9 】

すなわち、一般式 (I - 1) 及び一般式 (I - 2) で示される電荷輸送性ポリウレタンは、例えば、次のようにして合成することができる。

50

【0080】

電荷輸送性モノマーとして上記一般式(ⅠⅠⅠ-1)で示される2価アルコール類を用いる場合は、電荷輸送性モノマー1当量と「OCN-Y-NCOで示されるジイソシアネート類」1当量とを混合し、重付加反応を行うことにより、上記一般式(Ⅰ-1)で示される電荷輸送性ポリウレタンを合成することができる。

【0081】

一方、電荷輸送性モノマーとして上記一般式(ⅠⅠⅠ-2)で示されるジイソシアネート類を用いる場合は、電荷輸送性モノマー1当量と「HO-Z-OHで示される2価アルコール類」1当量とを混合し、重付加反応を行うことにより、上記一般式(Ⅰ-2)で示される電荷輸送性ポリウレタンを合成することができる。

10

【0082】

上記重付加反応に用いる触媒としては、例えば、ジラウリル酸ジブチルスズ(ⅠⅠ)、二酢酸ジブチルスズ(ⅠⅠ)、ナフテン酸鉛等の有機金属化合物等が挙げられ、通常、重付加によるポリウレタン合成反応に用いる公知の触媒が使用できる。

【0083】

ジイソシアネート類として芳香族系のジイソシアネート類を用いる場合は、触媒として、トリエチレンジアミン等の第三アミンを用いる事ができる。上記有機金属化合物と第三アミンは、混合して用いてもよい。

【0084】

触媒の量は、電荷輸送性モノマー1重量部に対して、望ましくは1/10, 000重量部以上1/10重量部以下、より望ましくは1/1, 000重量部以上1/50重量部以下の範囲で用いられる。

20

【0085】

溶剤は、重付加反応に用いる原料(一般式(ⅠⅠⅠ-1)で示される電荷輸送性モノマーと「OCN-Y-NCOで示されるジイソシアネート類」、又は、一般式(ⅠⅠⅠ-2)で示される電荷輸送性モノマーと「HO-Z-OHで示される2価アルコール類」)を溶解するものであれば、特に限定されないが、反応性の点から極性の低い溶剤やアルコールとの水素結合を生じない溶剤を用いることが望ましい。望ましい溶剤としては例えば、トルエン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、1-クロロナフタレン等が挙げられる。

用いる溶剤の量は、電荷輸送性モノマー1重量部に対して、望ましくは1重量部以上100重量部以下、より望ましくは2重量部以上50重量部以下の範囲で用いられる。

30

反応温度は特に限定されず、任意に設定できる。

【0086】

反応終了後には、反応溶液をそのまま、電荷輸送性ポリウレタンが溶解しにくい貧溶剤(具体的には例えば、メタノール、エタノール等のアルコール類、アセトン等)の中に滴下し、電荷輸送性ポリウレタンを析出させて分離した後、水や有機溶剤で十分洗浄し、乾燥させる。

【0087】

更に、必要であれば再沈殿処理(具体的には、有機溶剤に溶解させ、貧溶剤中に滴下し、電荷輸送性ポリウレタンを析出させる処理)を繰り返してもよい。

40

再沈殿処理の際には、メカニカルスターラー等で、効率よく攪拌しながら行うことが好ましい。

【0088】

再沈殿処理の際に電荷輸送性ポリウレタンを溶解させる溶剤は、電荷輸送性ポリウレタン1重量部に対して、望ましくは1重量部以上100重量部以下、より望ましくは2重量部以上50重量部以下の範囲で用いられる。また、貧溶剤は電荷輸送性ポリウレタン1重量部に対して、望ましくは1重量部以上1,000重量部以下、より望ましくは10重量部以上500重量部以下の範囲で用いられる。

【0089】

電荷輸送性モノマーとして上記一般式(ⅠⅠⅠ-3)で示されるビスクロロホルメート

50

類を用いる場合は、電荷輸送性モノマー 1 当量と「 $H_2N-Y-NH_2$ 」で示されるジアミン類」1 当量とを混合し、重縮合反応を行うことにより、上記一般式 (I-1) で示される電荷輸送性ポリウレタンを合成することができる。

【0090】

一方、電荷輸送性モノマーとして上記一般式 (III-4) で示されるジアミン類を用いる場合は、電荷輸送性モノマー 1 当量と「 $ClCOO-Z-OCOCl$ 」で示されるビスクロロホルメート類」1 当量とを混合し、重縮合反応を行うことにより、上記一般式 (I-2) で示される電荷輸送性ポリウレタンを合成することができる。

【0091】

上記重縮合反応に用いる溶剤としては、例えば、塩化メチレン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラヒドロフラン (THF)、トルエン、クロロベンゼン、1-クロロナフタレン等が望ましく用いられる。溶剤は、電荷輸送性モノマー 1 重量部に対して、望ましくは 1 重量部以上 100 重量部以下、より望ましくは 2 重量部以上 50 重量部以下の範囲で用いられる。

反応温度は特に限定されず、任意に設定できる。

【0092】

重合反応終了後には、前述のように再沈殿処理により精製する。

【0093】

また、電荷輸送性モノマーとして上記一般式 (III-3) で示されるビスクロロホルメート類を用いる場合において、「 $H_2N-Y-NH_2$ 」で示されるジアミン類」として塩基性度の高い化合物を用いる場合には、界面重合法も用いることができる。

【0094】

具体的には例えば、上記ジアミン類を水に加え、ジアミン類 1 当量に対し 1 当量の酸 (例えば、テレフタル酸クロライド等) を加えて溶解させた後、激しく攪拌しながら、上記ジアミン類 1 当量に対し 1 当量の「一般式 (III-3) で示される電荷輸送性モノマー」を加えることによって、重合することもできる。

【0095】

用いる水の量は、ジアミン類 1 重量部に対して、望ましくは 1 重量部以上 1,000 重量部以下、より望ましくは 10 重量部以上 500 重量部以下の範囲で用いられる。

電荷輸送性モノマーを溶解させる溶剤としては、例えば、塩化メチレン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、トルエン、クロロベンゼン、1-クロロナフタレン等が望ましく用いられる。

反応温度は特に限定されず、任意に設定できる。

【0096】

上記界面重合反応を促進するため、アンモニウム塩、スルホニウム塩等の相間移動触媒を用いることが望ましい。相間移動触媒は、電荷輸送性モノマー 1 重量部に対して、望ましくは 0.1 重量部以上 10 重量部以下、より望ましくは 0.2 重量部以上 5 重量部以下の範囲で用いられる。

【0097】

[3] 有機電界発光素子の層構成

次に、本実施の形態の有機電界発光素子の層構成について詳記する。

【0098】

本実施の形態の有機電界発光素子は、少なくとも一方が透明又は半透明である一対の陽極及び陰極の間に挟まれた、前記陽極と接して設けられたバッファ層と有機化合物層より構成される。

【0099】

本実施の形態の有機電界発光素子においては、有機化合物層が 1 つの層により構成される場合は、有機化合物層は「キャリア輸送能を持つ発光層」を意味し、該発光層が前記電荷輸送性ポリウレタンを含有してなる。また、有機化合物層が複数の層により構成される場合 (機能分離型の場合) は、その少なくとも一層は発光層であり、他の有機化合物層は

10

20

30

40

50

、キャリア輸送層、すなわち、正孔輸送層、電子輸送層、又は、正孔輸送層及び電子輸送層よりなるものを意味し、これらの少なくとも一層が前記電荷輸送性ポリウレタンを含有してなる。具体的には、例えば、有機化合物層は、少なくとも発光層及び電子輸送層から構成、少なくとも正孔輸送層、発光層及び電子輸送層から構成、或いは、少なくとも正孔輸送層及び発光層から構成され、これらの少なくとも一層（正孔輸送層、発光層、及び電子輸送層）が前記電荷輸送性ポリウレタンを含有してなるものが挙げられる。本発明の有機電界発光素子においては、発光層が、電荷輸送性材料（前記電荷輸送性ポリウレタン以外の正孔輸送性材料、電子輸送性材料）を含有してもよい。詳しくは後述する。

【0100】

以下、図面を参照しつつ、より詳細に説明するが、これらに限定されるわけではない。

10

図1乃至図4は、本実施の形態の有機電界発光素子の層構成を説明するための模式的断面図であって、図1、図2、図3の場合は、有機化合物層が複数の場合の一例であり、図4の場合は、有機化合物層が1つの場合の例を示す。なお、図1乃至図4において、同様の機能を有するものは同じ符号を付して説明する。

【0101】

図1に示す有機電界発光素子10は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、バッファ層3、発光層5、電子輸送層6及び背面電極8を順次積層してなる。少なくとも発光層5は、電荷輸送性ポリウレタンを含んでいる。

【0102】

有機電界発光素子10が上記構成をとることにより、他の層構成に比べ、製造容易性と発光効率との両立が図られる。

20

上記構成により、他の層構成に比べ製造容易性と発光効率との両立が図られる理由は定かではないが、これは、全て機能分離した層構成に比べ層数が少ない一方で、一般に正孔に比較して移動度が低い電子の注入効率を補い、発光層での電荷の均衡が図られるためであると推測される。

【0103】

図2に示す有機電界発光素子10は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、バッファ層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6及び背面電極8を順次積層してなる。少なくとも正孔輸送層4は、電荷輸送性ポリウレタンを含んでいる。

【0104】

有機電界発光素子10が上記構成をとることにより、他の層構成の素子に比べ、発光効率に優れ、低電圧駆動が可能となる。

30

上記構成により、他の層構成の素子に比べ発光効率に優れ、低電圧駆動が可能となる理由は定かではないが、これは、全て機能分離することで、他の層構成に比べ、電荷の注入効率が最も高くなり、発光層で電荷が再結合可能であるためであると推測される。

【0105】

図3に示す有機電界発光素子10は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、バッファ層3、正孔輸送層4、発光層5及び背面電極8を順次積層してなる。少なくとも正孔輸送層4は、電荷輸送性ポリウレタンを含んでいる。

【0106】

有機電界発光素子10が上記構成をとることにより、他の構成に比べ、製造容易性と耐久性との両立が図れる。

40

上記構成により、他の構成に比べ製造容易性と耐久性との両立が図れる理由は定かではないが、これは、全て機能分離した層構成に比べ層数が少ない一方で、発光層への正孔の注入効率が向上し、発光層で過剰な電子の注入が抑制されるためであると推測される。

【0107】

図4に示す有機電界発光素子10は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、バッファ層3、キャリア輸送能を持つ発光層7及び背面電極8を順次積層してなる。キャリア輸送能を持つ発光層7は、電荷輸送性ポリウレタンを含んでいる。

【0108】

50

有機電界発光素子 10 が上記構成をとることにより、他の層構成に比べ、素子の大面積化及び製造が容易である。

上記構成により、他の層構成に比べ、素子の大面積化及び製造が容易である理由は定かではないが、これは、層数が少なく、例えば湿式塗布等により作製できるためであると推測される。

【0109】

ここで発光層 5 及びキャリア輸送能を持つ発光層 7 は、電荷輸送性材料（上記電荷輸送性ポリウレタン以外の正孔輸送性材料、電子輸送性材料）を含んでもよい。

【0110】

有機電界発光素子 10 が上記構成をとることにより、発光層に電荷が溜まり難くなり、耐久性が向上する。

上記構成により、発光層に電荷が溜まり難くなり耐久性が向上する理由は定かではないが、これは、発光層に電荷輸送能が付与或いは向上され、電荷が溜まり難くなるためであると推測される。

【0111】

ここで、上記特定の電荷輸送性ポリウレタンを含む有機化合物層のうち、バッファ層と接している有機化合物層の膜厚は、20 nm 以上 100 nm 以下の範囲内であることが望ましい。

以下、各々を詳しく説明する。

【0112】

上記電荷輸送性ポリウレタンを含有する層は、例えば図 1 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、発光層 5、電子輸送層 6 としていずれも作用することができ、また、図 2 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、正孔輸送層 4、発光層 5、電子輸送層 6 としていずれも作用することができ、図 3 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、正孔輸送層 4、発光層 5 としていずれも作用することができ、図 4 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、キャリア輸送能を持つ発光層 7 として作用することができる。

【0113】

図 1 乃至図 4 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、透明絶縁体基板 1 は、発光を取り出すため透明なものが望ましく、具体的には例えば、ガラス、プラスチックフィルム等が用いられるが、これらに限られるものではない。

【0114】

透明電極 2 は、透明絶縁体基板と同様に発光を取り出すため透明であって、かつ、正孔の注入を行うため仕事関数の大きなものが望ましく、具体的には例えば、酸化スズインジウム（ITO）、酸化スズ（NESA）、酸化インジウム、酸化亜鉛等の酸化膜、及び蒸着或いはスパッタされた金、白金、パラジウム等が用いられるが、これらに限られるものではない。

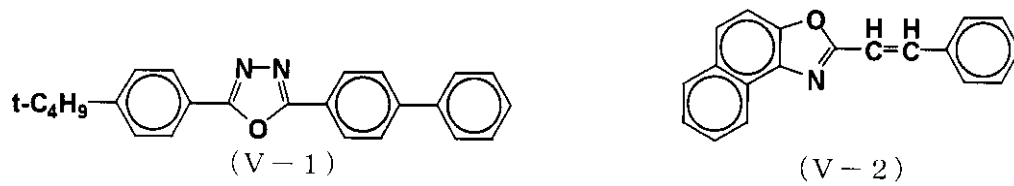
【0115】

図 1 及び図 2 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、電子輸送層 6 は、目的に応じて機能（電子輸送能）が付与された前記電荷輸送性ポリウレタン単独で形成されていてもよいが、電気的特性をさらに改善する等の目的で、電子移動度を調節するために、電荷輸送性ポリウレタン以外の電子輸送性材料を 1 重量%ないし 50 重量%の範囲で混合分散して形成されていてもよい。

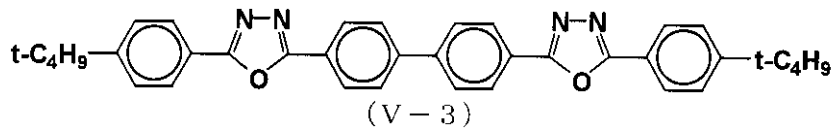
このような電子輸送性材料としては、好適には例えば、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、ジフェノキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体等が挙げられる。より好適な具体例として、例えば、下記例示化合物（V-1）乃至（V-3）が挙げられるが、これらに限定されたものではない。なお、前記電荷輸送性ポリウレタンを用いない場合、電子輸送層 6 は、これら電子輸送性材料のみで形成されることとなる。

【0116】

【化 1 1】



10



20

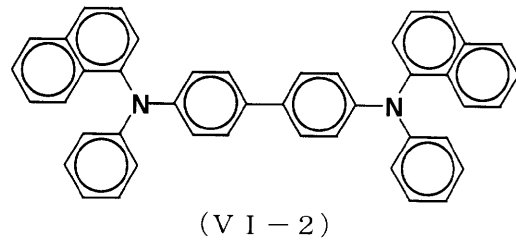
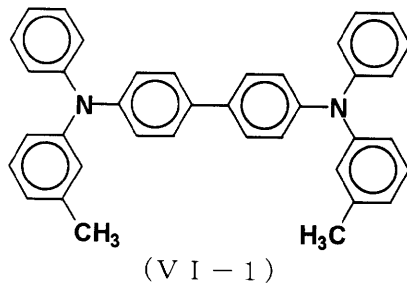
【0 1 1 7】

図 2 及び図 3 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、正孔輸送層 4 は、目的に応じて機能（正孔輸送能）が付与された電荷輸送性ポリウレタン単独で形成されていてもよいが、正孔移動度を調節するために電荷輸送性ポリウレタン以外の正孔輸送性材料を 1 重量%ないし 50 重量%の範囲で混合分散して形成されていてもよい。

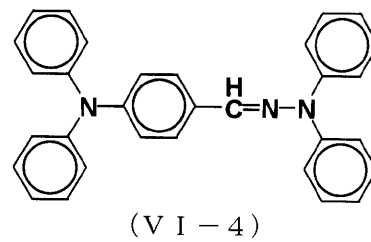
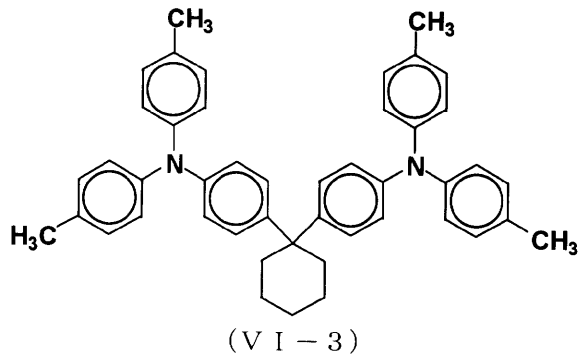
このような正孔輸送性材料としては、具体的には例えば、テトラフェニレンジアミン誘導体、トリフェニルアミン誘導体、カルバゾール誘導、スチルベン誘導体、アリアルヒドラゾン誘導体、ポルフィリン系化合物等が挙げられ、特に好適な具体例としては、例えば、下記例示化合物（V I - 1）乃至（V I - 7）が挙げられる。さらに、電荷輸送性ポリウレタンとの相容性が良いことから、テトラフェニレンジアミン誘導体がより望ましい。また、他の汎用の樹脂等との混合物としてもよい。なお、前記電荷輸送性ポリウレタンを用いない場合、正孔輸送層 4 は、これら正孔輸送性材料のみで形成されることとなる。

【0 1 1 8】

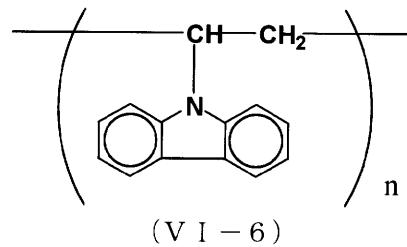
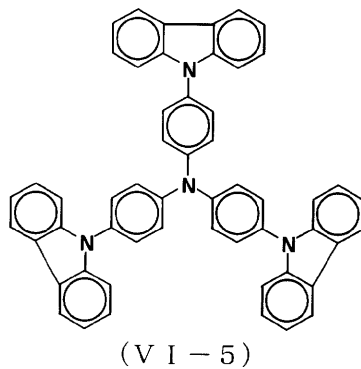
【化 1 2】



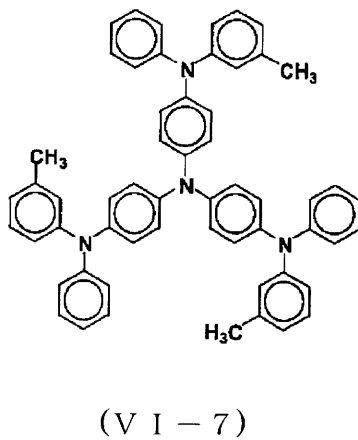
10



20



30



40

【0119】

ここで、上記一般式(VI-6)中、 n は整数値であり、10乃至100000の範囲内であることが望ましく、1000乃至50000の範囲内であることがより望ましい。

【0120】

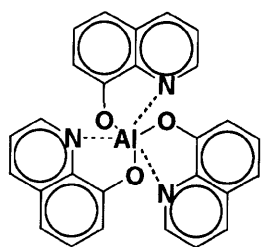
50

図 1、図 2 又は図 3 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、発光層 5 は、他種と比べ、固体状態で高い蛍光量子収率を示す化合物が発光材料として用いられる。発光材料が有機低分子の場合、真空蒸着法もしくは低分子と結着樹脂を含む溶液又は分散液を塗布・乾燥することにより良好な薄膜形成が可能であることが条件である。また、高分子の場合、それ自身を含む溶液又は分散液を塗布・乾燥することにより良好な薄膜形成が可能であることが条件である。好適な具体例としては例えば、有機低分子の場合、キレート型有機金属錯体、多核又は縮合芳香環化合物、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、シロール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサチアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられ、高分子の場合、ポリパラフェニレン誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフエン誘導体、ポリアセチレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられる。より好適な具体例としては例えば、下記の化合物 (V I I - 1) 乃至 (V I I - 17) が挙げられるが、これらに限定されたものではない。

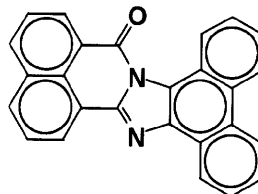
10

【 0 1 2 1 】

【 化 1 3 】

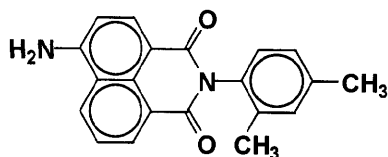


(V I I - 1)

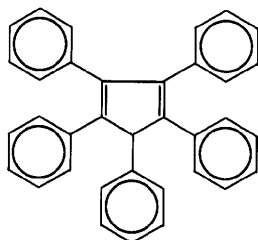


(V I I - 2)

20

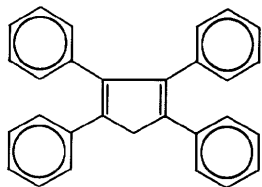


(V I I - 3)

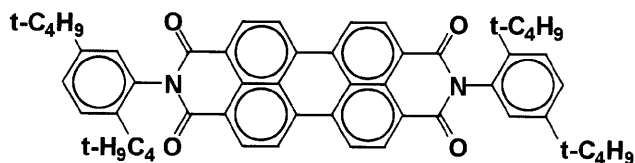


(V I I - 4)

30

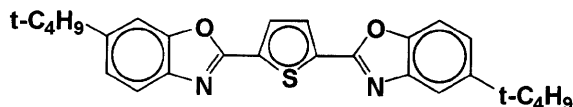


(V I I - 5)

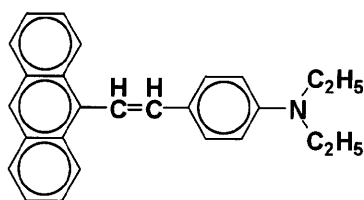


(V I I - 6)

40



(V I I - 7)

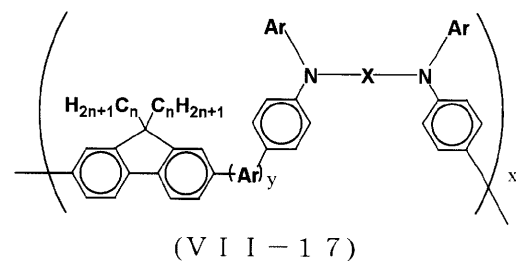
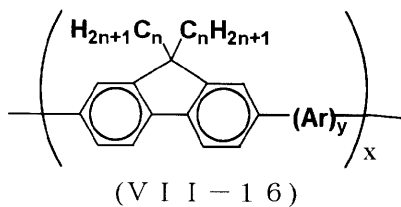
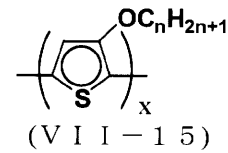
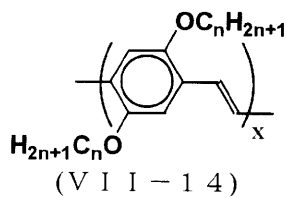
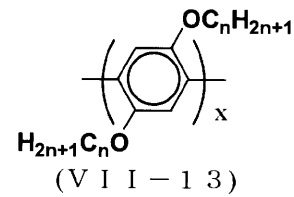
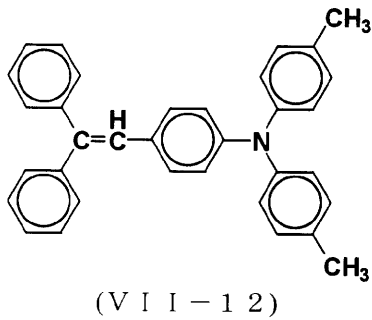
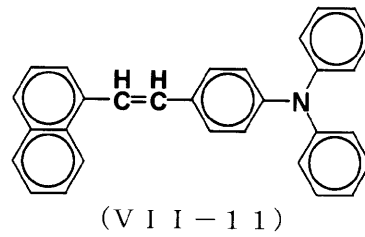
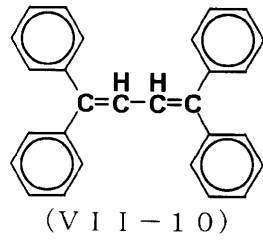
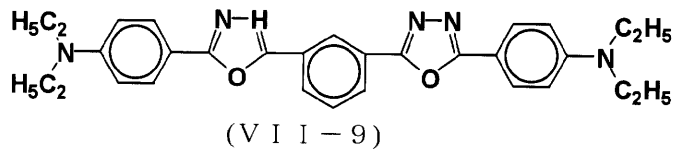


(V I I - 8)

50

【 0 1 2 2 】

【 化 1 4 】



【 0 1 2 3 】

ここで、上記一般式 (VII-13) 乃至 (VII-17) 中、Ar 及び X は、上記一般式 (II-1) 及び (II-2) における Ar 及び X と同様の構造を有する一価基あるいは二価基を意味し、n 及び x は 1 以上の整数を、y は 0 又は 1 を示す。

【 0 1 2 4 】

また、有機電界発光素子 10 の耐久性向上或いは発光効率の向上を目的として、上記の

10

20

30

40

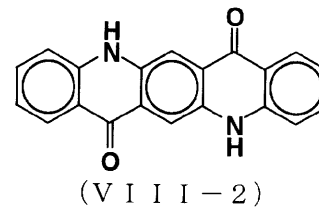
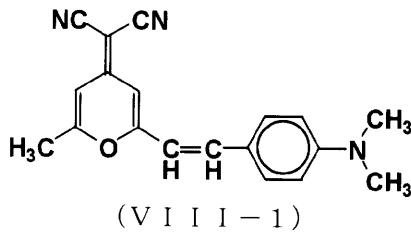
50

発光材料中にゲスト材料として発光材料と異なる色素化合物をドーピングしてもよい。真空蒸着によって発光層を形成する場合、共蒸着によってドーピングを行い、溶液又は分散液を塗布・乾燥することで発光層を形成する場合、溶液又は分散液中に混合することでドーピングを行う。発光層中における色素化合物のドーピングの割合としては0.001重量%乃至40重量%程度、望ましくは0.01重量%乃至10重量%程度である。このようなドーピングに用いられる色素化合物としては、発光材料との相容性が良く、かつ発光層の良好な薄膜形成を妨げない有機化合物が用いられ、好適には例えば、DCM誘導体、キナクリドン誘導体、ルブレノ誘導体、ポルフィリン系化合物等が挙げられる。より好適な具体例としては例えば、下記の化合物(VIII-1)乃至(VIII-4)が用いられるが、これらに限定されたものではない。

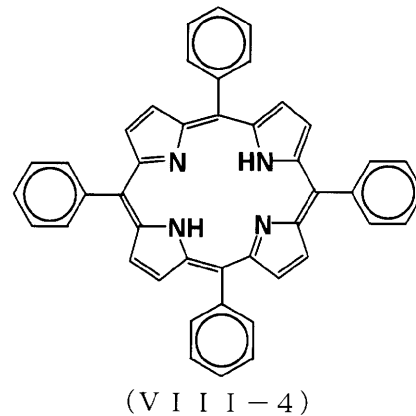
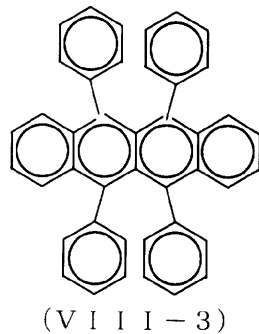
10

【0125】

【化15】



20



30

【0126】

発光層5は、図1に示される有機電界発光素子10の層構成の場合は、前記発光性材料の他に上記電荷輸送性ポリウレタンが含まれている。また図2又は図3に示される有機電界発光素子10の層構成の場合は、発光層5は、前記発光性材料単独で形成されても良いが、電気特性及び発光特性をさらに改善する等の目的で、前記発光性材料の他に上記電荷輸送性ポリウレタンを含んでも良い。また発光層5は、上記電荷輸送性ポリウレタンの他に、それ以外の電荷輸送性材料を含んでもよい。

40

上記電荷輸送性ポリウレタン又はそれ以外の電荷輸送性材料を発光層5に含ませる場合は、前記電荷輸送性ポリウレタンを1重量%ないし50重量%の範囲で混合分散して形成、もしくは前記発光性高分子中に前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を1重量%ないし50重量%の範囲で混合分散して形成させてもよい。また、前記電荷輸送性高分子が発光特性も兼ね備えたものである場合、発光材料として用いても良く、その場合、電気特性及び発光特性をさらに改善する等の目的で、前記発光材料に前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を1重量%ないし50重量%の範囲で混合分散して形成させてもよい。

【0127】

図4に示される有機電界発光素子10の層構成の場合、キャリア輸送能を持つ発光層7

50

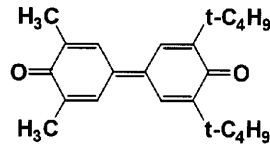
は、目的に応じて機能（正孔輸送能、或いは電子輸送能）が付与された前記電荷輸送性ポリウレタン中に発光材料（具体的には例えば前記発光材料（V I I - 1）乃至（V I I - 17））を50重量%以下分散させた有機化合物層であるが、有機電界発光素子10に注入される正孔と電子のバランスを調節するために前記電荷輸送性ポリウレタン以外の電荷輸送性材料を10重量%乃至50重量%分散させてもよい。

【0128】

このような電荷輸送性材料としては、キャリア輸送能を持つ発光層7の電子移動度を調節する場合、電子輸送性材料として好適には例えば、オキサジアゾール誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、ジフェノキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体等が挙げられる。より好適な具体例としては例えば、上記例示化合物（V - 1）乃至（V - 3）が挙げられる。また、前記電荷輸送性ポリウレタンと強い電子相互作用を示さない有機化合物が用いられることが望ましく、より望ましくは下記例示化合物（19）が用いられるが、これに限定されるものではない。

【0129】

【化16】



(19)

【0130】

キャリア輸送能を持つ発光層7の正孔移動度を調節する場合、正孔輸送性材料として好適には例えば、テトラフェニレンジアミン誘導体、トリフェニルアミン誘導体、カルバゾール誘導、スチルベン誘導体、アリアルヒドラゾン誘導体、ポルフィリン系化合物等、特に好適な具体例として上記例示化合物（V I - 1）乃至（V I - 7）が挙げられるが、電荷輸送性ポリウレタンとの相容性が良いことから、テトラフェニレンジアミン誘導体が好ましい。

【0131】

図1乃至図4に示される有機電界発光素子10の層構成の場合、背面電極8には、真空蒸着可能で、電子注入を行うため仕事関数の小さな金属が使用されるが、特に望ましくは例えば、マグネシウム、アルミニウム、銀、インジウム及びこれらの合金、もしくはフッ化リチウムや酸化リチウム等の金属ハロゲン化合物や金属酸化物、リチウム、カルシウム、バリウム、セシウム等のアルカリ金属等も用いられる。また、背面電極8上には、さらに素子の水分や酸素による劣化を防ぐために保護層を設けてもよい。具体的な保護層の材料としては、例えば、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Alなどの金属、MgO、SiO₂、TiO₂等の金属酸化物、ポリエチレン樹脂、ポリウレタ樹脂、ポリイミド樹脂等の樹脂が挙げられる。保護層の形成には、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、プラズマ重合法、CVD法、コーティング法が適用できる。

【0132】

[4] 有機電界発光素子の製造方法

これら図1乃至図4に示される有機電界発光素子10は、まず透明電極2の上にバッファ層3を形成する。

バッファ層は上記各材料を真空蒸着法、スパッタリング、CVD法、等を用いることにより薄膜形成する。

【0133】

次に、各有機電界発光素子10の層構成に応じて、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6或いはキャリア輸送能を持つ発光層7を順に形成していく。正孔輸送層4、発光層5

、電子輸送層 6 或いはキャリア輸送能を持つ発光層 7 は、上記各材料を、真空蒸着法、もしくは有機溶媒中に溶解或いは分散し、得られた塗布液を用いて前記透明電極上に、例えばスピンコーティング法、ディップ法等を用いて成膜することによって形成される。

【0134】

また、電荷輸送材料、発光材料として高分子を用いる場合、各層形成は塗布液を用いた製膜法により行うことが望ましいが、例えばインクジェット法等を利用して成膜を行ってもよい。

【0135】

形成される正孔輸送層 4、発光層 5 及び電子輸送層 6 の膜厚は、例えば、各々 20 乃至 100 nm、特に 30 乃至 80 nm の範囲であることが望ましい。また、キャリア輸送能を持つ発光層 7 の膜厚は、例えば、30 乃至 200 μm 程度が望ましい。上記各材料（前記電荷輸送性ポリウレタン、発光材料等）の分散状態は、分子分散状態でも粒子分散状態でも構わない。塗布液を用いた成膜法の場合、分子分散状態とするためには、分散溶媒は上記各材料の共通溶媒を用いる必要があり、粒子分散状態とするために分散溶媒は上記各材料の分散性及び溶解性を考慮して選択する必要がある。粒子状に分散するためには、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェイカー、アトライター、ホモジェナイザー、超音波法等が利用できる。

【0136】

そして、最後に、発光層 5、電子輸送層 6 或いはキャリア輸送能を持つ発光層 7 の上に背面電極 8 を、例えば真空蒸着法により形成することにより素子が完成される。

【0137】

[5] 表示装置

本実施の形態の表示装置は、上記本実施の形態の有機電界発光素子と、有機電界発光素子を駆動するための駆動手段と、を有する。

本実施の形態の表示装置が、上記本実施の形態の有機電界発行素子を有することにより、表示装置の面積化及び製造を用意としつつ、輝度、安定性及び耐久性の向上を実現することができる。

【0138】

表示装置として具体的には例えば、図 1 乃至 4 に示すように、有機電界発光素子 10 の一対の電極（透明電極 2、背面電極 8）に連結され、当該一対の電極間に直流電圧を印加するための電圧印加装置 9 を、駆動手段として備えたものが挙げられる。

電圧印加装置 9 を用いた有機電界発光素子 10 の駆動方法としては、例えば、一対の電極間に、4 乃至 20 V で、電流密度 1 乃至 200 mA/cm^2 の直流電圧を印加することによって有機電界発光素子 10 を発光させることができる。

【0139】

また、本実施の形態の有機電界発光素子 10 は、最小単位（1 画素単位）の構成について説明したが、例えば、当該 1 画素単位（有機電界発光素子 10）をマトリクス状に配置した表示装置に適用される。無論、電極対をマトリクス状に配置してもよい。

また、表示装置の駆動方式としては、従来公知の技術、例えば複数の行電極及び列電極を配し、行電極を走査駆動しながら各行電極に対応する画像情報に応じて列電極を一括して駆動させる単純マトリクス駆動や、各画素毎に配された画素電極によるアクティブマトリクス駆動等を利用することができる。

【実施例】

【0140】

以下、本発明を、実施例を挙げてさらに具体的に説明する。ただし、これら各実施例は、本発明を制限するものではない。

【0141】

—電荷輸送性ポリウレタンの合成—

（合成例 1）

下記化合物（XV-1）2.0 g、クロロベンゼン 30 ml を 50 ml のフラスコに入

10

20

30

40

50

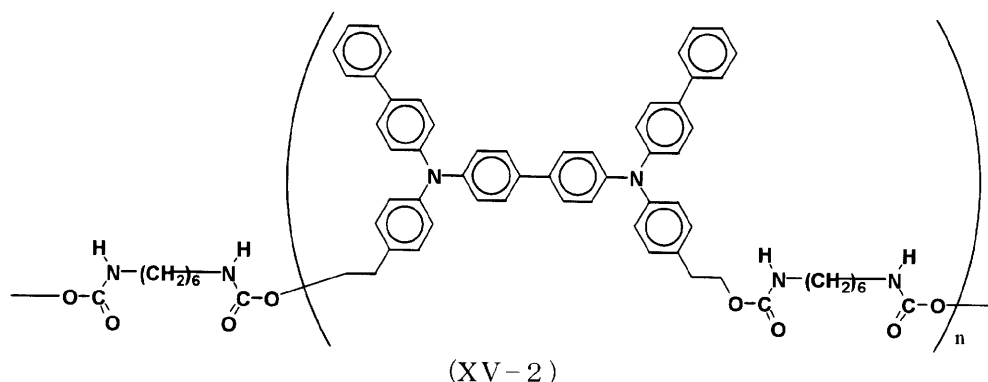
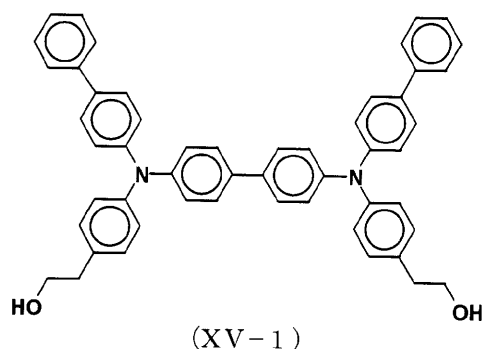
れ、窒素気流下、攪拌溶解させた。次いで、フラスコ中に、ヘキサメチレンジイソシアネート 0.54 g をクロロベンゼン 10 ml に溶解させたものを、30 分かけて滴下し、150 に加熱して 2 時間攪拌した。その後、室温まで冷却し、テトラヒドロフラン (THF) 50 ml に溶解して、不溶物を 0.2 μm のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターにて濾過した。その濾液をメタノール 500 ml 中に攪拌しながら滴下する再沈殿処理を、3 回行うことでポリマーを洗浄析出させた。

得られたポリマーを濾過し、十分にメタノールで洗浄した後乾燥させ、1.9 g の電荷輸送性ポリウレタン (XV-2) を得た。

電荷輸送性ポリウレタン (XV-2) の分子量分布を、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) にて測定したところ、重量平均分子量 $M_w = 9.67 \times 10^4$ (スチレン換算) であり、数平均分子量 M_n と重量平均分子量 M_w との比 (M_w / M_n) = 1.44 であった。

【0142】

【化17】



【0143】

(合成例2)

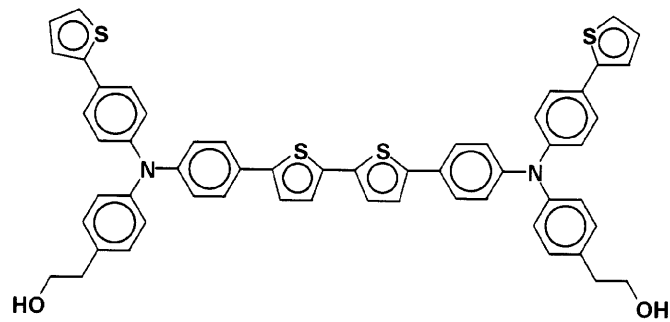
下記化合物 (XVI-1) 2.0 g、クロロベンゼン 30 ml を 50 ml のフラスコに入れ、窒素気流下、攪拌溶解させた。次いで、フラスコ中に、ヘキサメチレンジイソシアネート 0.54 g をクロロベンゼン 10 ml に溶解させたものを、30 分かけて滴下し、150 に加熱して 2 時間攪拌した。その後、室温まで冷却し、テトラヒドロフラン (THF) 50 ml に溶解して、不溶物を 0.2 μm のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターにて濾過した。その濾液をメタノール 500 ml 中に攪拌しながら滴下する再沈殿処理を、3 回行うことでポリマーを洗浄析出させた。

得られたポリマーを濾過し、十分にメタノールで洗浄した後乾燥させ、1.8 g の電荷輸送性ポリウレタン (XVI-2) を得た。

電荷輸送性ポリウレタン (XVI-2) の分子量分布を、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) にて測定したところ、重量平均分子量 $M_w = 1.23 \times 10^5$ (スチレン換算) であり、数平均分子量 M_n と重量平均分子量 M_w との比 (M_w / M_n) = 2.01 であった。

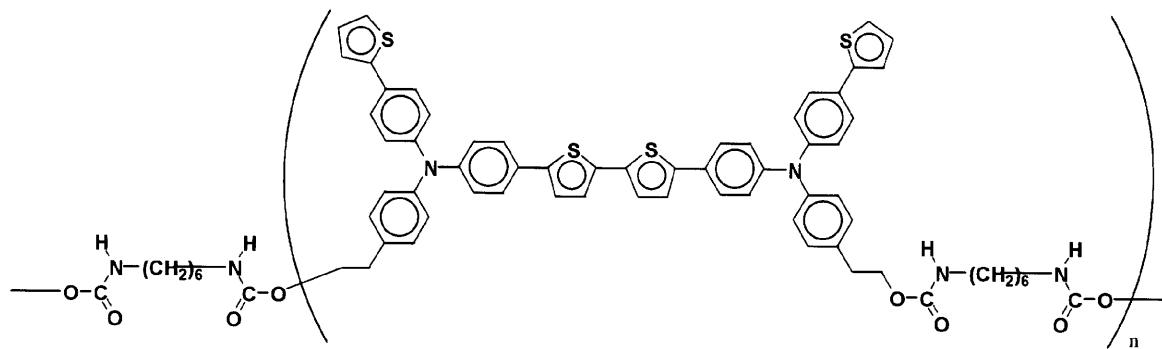
【 0 1 4 4 】

【 化 1 8 】



(XVI-1)

10



(XVI-2)

20

【 0 1 4 5 】

(合成例 3)

下記化合物 (XVII-1) 2.0 g、クロロベンゼン 30 ml を 50 ml のフラスコに入れ、窒素気流下、攪拌溶解させた。次いで、フラスコ中に、ヘキサメチレンジイソシアネート 0.54 g をクロロベンゼン 10 ml に溶解させたものを、30 分かけて滴下し、150 に加熱して 2 時間攪拌した。その後、室温まで冷却し、テトラヒドロフラン (THF) 50 ml に溶解して、不溶物を 0.2 μm のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターにて濾過した。その濾液をメタノール 500 ml 中に攪拌しながら滴下する再沈殿処理を、3 回行うことでポリマーを洗浄析出させた。

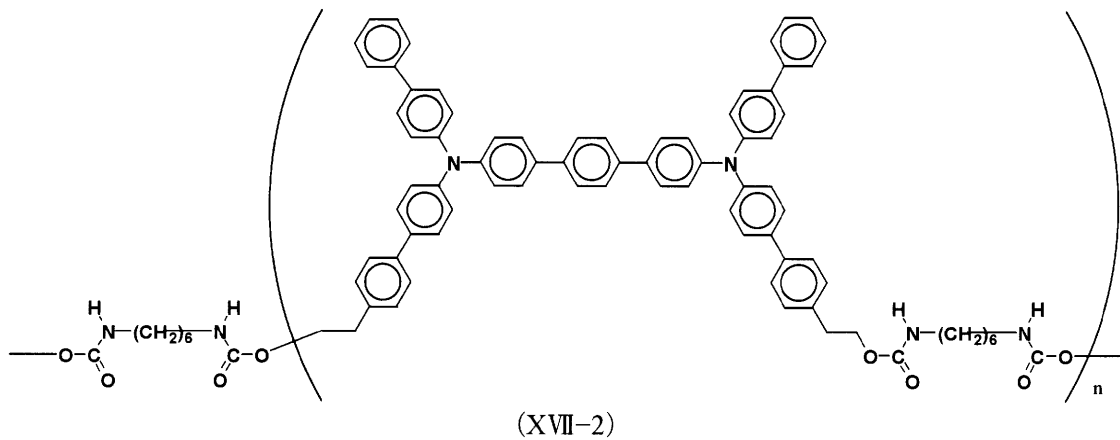
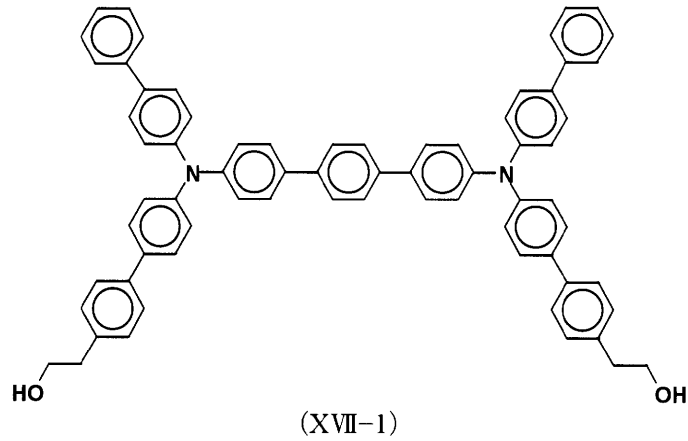
30

得られたポリマーを濾過し、十分にメタノールで洗浄した後乾燥させ、1.9 g の電荷輸送性ポリウレタン (XVII-2) を得た。

電荷輸送性ポリウレタン (XVII-2) の分子量分布を、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) にて測定したところ、重量平均分子量 $M_w = 1.17 \times 10^5$ (スチレン換算) であり、数平均分子量 M_n と重量平均分子量 M_w との比 (M_w / M_n) = 1.51 であった。

【 0 1 4 6 】

【化 1 9】



【 0 1 4 7 】

—有機電界発光素子の作製—

次に、上記方法で得た電荷輸送性ポリウレタンを使用し、以下のようにして素子を作製した。

【 0 1 4 8 】

(実施例 1)

2 mm 幅の短冊型ガラス基板上に、エッチングによりITO電極を形成し洗浄後乾燥させた後、バッファ層用材料として三酸化モリブデン (MoO_3) を用いて、真空蒸着法により膜厚 10 nm のバッファ層を形成した。

【 0 1 4 9 】

次に電荷輸送性材料として、電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物 (XVI-2)〕 ($M_w = 1.23 \times 10^5$ (スチレン換算)) を 0.5 重量部と、発光性高分子として、下記例示化合物 (XI、ポリフルオレン系、 $M_w = 9.67 \times 10^4$) を 0.5 重量部混合し、混合物の 10 重量%クロロベンゼン溶液を調製し、0.1 μm のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターで濾過した。この溶液を用いて、バッファ層上にスピンコート法により塗布して膜厚 80 nm の電荷輸送能を持つ発光層を形成した。

【 0 1 5 0 】

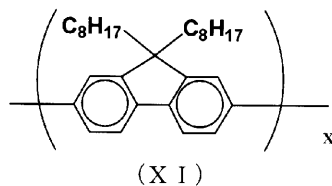
10

20

30

40

【化 20】



【0151】

さらに十分乾燥させた後、電子輸送性材料として、電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物(XVI-2)〕($M_w = 1.23 \times 10^5$)の5重量%ジクロロエタン溶液を調整し、 $0.1 \mu\text{m}$ のPTFEフィルターで濾過した後に発光層上にスピンコート法により塗布し、膜厚 30 nm の電子輸送層を形成した。

10

【0152】

最後にMg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、 2 mm 幅、 150 nm 厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は 0.04 cm^2 であった。

【0153】

(実施例2)

2 mm 幅の短冊型ガラス基板上に、エッチングによりITO電極を形成し洗浄後乾燥させた後、バッファ層用材料として三酸化モリブデン(MoO_3)を用いて、真空蒸着法により膜厚 10 nm のバッファ層を形成した。

20

【0154】

次に正孔輸送性材料として、電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物(XV-2)〕($M_w = 9.67 \times 10^4$)の5重量%クロロベンゼン溶液を調整し、 $0.1 \mu\text{m}$ のポリテトラフルオロエチレン(PTFE)フィルターで濾過した後にバッファ層上にスピンコート法により塗布して膜厚 30 nm の正孔輸送層を形成した。

【0155】

十分乾燥させた後、発光材料として、昇華精製したAlq₃(例示番号VII-1)をタングステンボードに入れ、真空蒸着法により蒸着して、正孔輸送層上に膜厚 50 nm の発光層を形成した。この時の真空度は 10^{-5} Torr 、ポート温度は 300 であった。

30

【0156】

さらに電子輸送性材料として、電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物(XVI-2)〕($M_w = 1.23 \times 10^5$)の5重量%ジクロロエタン溶液を調整し、 $0.1 \mu\text{m}$ のPTFEフィルターで濾過した後に発光層上にスピンコート法により塗布し、膜厚 30 nm の電子輸送層を形成した。

【0157】

最後にMg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、 2 mm 幅、 150 nm 厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は 0.04 cm^2 であった。

40

【0158】

(実施例3)

2 mm 幅の短冊型ガラス基板上に、エッチングによりITO電極を形成し洗浄後乾燥させた後、バッファ層用材料として三酸化モリブデン(MoO_3)を用いて、真空蒸着法により膜厚 10 nm のバッファ層を形成した。

【0159】

次に正孔輸送性材料として、電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物(XV-2)〕($M_w = 9.67 \times 10^4$)の5重量%クロロベンゼン溶液を調整し、 $0.1 \mu\text{m}$ のポリテトラフルオロエチレン(PTFE)フィルターで濾過した後にバッファ層上にスピンコート

50

法により塗布して膜厚 30 nm の正孔輸送層を形成した。

【0160】

十分乾燥させた後、発光材料として、昇華精製した Alq_3 (例示番号 VII-1) をタングステンボードに入れ、真空蒸着法により蒸着して、正孔輸送層上に膜厚 50 nm の発光層を形成した。この時の真空度は 10^{-5} Torr、ポート温度は 300 であった。

【0161】

最後に Mg-Ag 合金を共蒸着により蒸着して、2 mm 幅、150 nm 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は 0.04 cm^2 であった。

【0162】

(実施例 4)

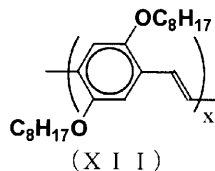
2 mm 幅の短冊型ガラス基板上に、エッチングにより ITO 電極を形成し洗浄後乾燥させた後、バッファ層用材料として三酸化モリブデン (MoO_3) を用いて、真空蒸着法により膜厚 10 nm のバッファ層を形成した。

【0163】

次に電荷輸送性材料として、電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物 (XV-2)〕($M_w = 9.67 \times 10^4$) (スチレン換算) を 0.5 重量部と、発光性高分子として、下記例示化合物 (XII、PPV 系、 $M_w = 10^5$) を 0.1 重量部混合し、混合物の 10 重量% クロロベンゼン溶液を調製し、 $0.1 \mu\text{m}$ のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターで濾過した。この溶液を用いて、バッファ層上にスピンコート法により塗布して膜厚 80 nm の電荷輸送能を持つ発光層を形成した。

【0164】

【化 21】



【0165】

最後に Mg-Ag 合金を共蒸着により蒸着して、2 mm 幅、150 nm 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は 0.04 cm^2 であった。

【0166】

(実施例 5)

バッファ層用材料として三酸化バナジウム (VO_3) を用いた以外は (実施例 1) と同様にして素子を作製した。

【0167】

(実施例 6)

バッファ層用材料として三酸化バナジウム (VO_3) を用いた以外は (実施例 2) と同様にして素子を作製した。

【0168】

(実施例 7)

バッファ層用材料として三酸化バナジウム (VO_3) を用いた以外は (実施例 3) と同様にして素子を作製した。

【0169】

(実施例 8)

バッファ層用材料として三酸化バナジウム (VO_3) を用いた以外は (実施例 4) と同

10

20

30

40

50

様にして素子を作製した。

【0170】

(実施例9)

バッファ層用材料として酸化シリコン(SiO_2)を用いた以外は(実施例1)と同様にして素子を作製した。

【0171】

(実施例10)

バッファ層用材料として酸化シリコン(SiO_2)を用いた以外は(実施例2)と同様にして素子を作製した。

【0172】

(実施例11)

バッファ層用材料として酸化シリコン(SiO_2)を用いた以外は(実施例3)と同様にして素子を作製した。

【0173】

(実施例12)

バッファ層用材料として酸化シリコン(SiO_2)を用いた以外は(実施例4)と同様にして素子を作製した。

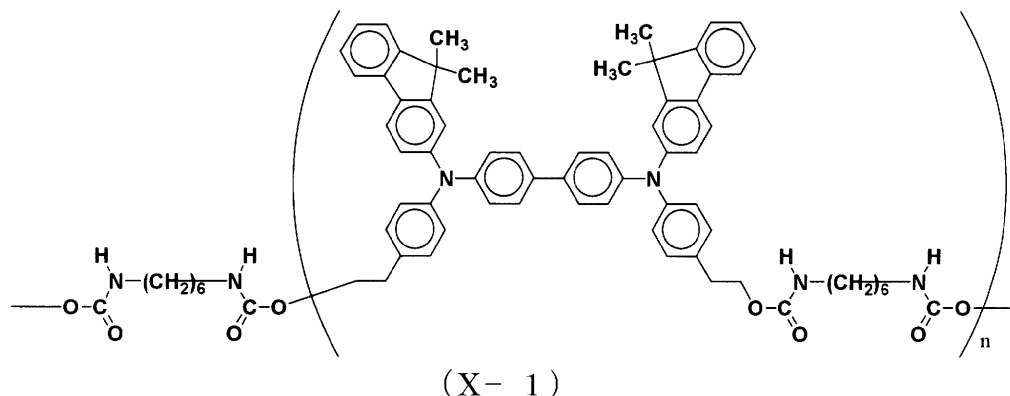
【0174】

(実施例13)

電子輸送性材料として電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物X-1〕($M_w = 1.20 \times 10^5$)、を用いた以外は(実施例1)と同様にして素子を作製した。

【0175】

【化22】



【0176】

(実施例14)

電子輸送性材料として電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物X-1〕($M_w = 1.20 \times 10^5$)、を用いた以外は(実施例2)と同様にして素子を作製した。

【0177】

(実施例15)

正孔輸送性材料として電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物X-1〕($M_w = 1.20 \times 10^5$)、を用いた以外は(実施例3)と同様にして素子を作製した。

【0178】

(実施例16)

電荷輸送性材料として、電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物X-1〕($M_w = 1.20 \times 10^5$)、を用いた以外は(実施例4)と同様にして素子を作製した。

(実施例17)

バッファ層の膜厚を、0.5 nmとした以外は(実施例3)と同様にして素子を作製した。

【0179】

10

20

30

40

50

(実施例 18)

バッファ層の膜厚を、5 nmとした以外は(実施例 3)と同様にして素子を作製した。

【0180】

(実施例 19)

バッファ層の膜厚を、50 nmとした以外は(実施例 3)と同様にして素子を作製した。

。

【0181】

(実施例 20)

バッファ層の膜厚を、250 nmとした以外は(実施例 3)と同様にして素子を作製した。

10

【0182】

(実施例 21)

発光層の形成方法を以下のようにした以外は(実施例 1)と同様にして素子を作製した。

。

すなわち、電荷輸送性材料として電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物(XVI-2)〕($Mw = 1.23 \times 10^5$)を0.3重量部と、発光性高分子として、上記例示化合物(XI、ポリフルオレン系、 $Mw = 9.67 \times 10^4$)を0.5重量部、さらに電荷輸送性材料〔例示化合物(V-1)〕を0.2重量部混合し、混合物の10重量%クロロベンゼン溶液を調製し、0.1 μm のポリテトラフルオロエチレン(PTFE)フィルターで濾過した。この溶液を用いて、バッファ層上にスピンコート法により塗布して膜厚80 nmの電荷輸送能を持つ発光層を形成した。

20

【0183】

(実施例 22)

発光層の形成方法を以下のようにした以外は(実施例 2)と同様にして素子を作製した。

。

すなわち、発光材料として、昇華精製したAlq₃(例示番号VII-1)と、電荷輸送性材料〔例示化合物(V-1)〕をそれぞれ別のタングステンポートに入れ、真空蒸着法により共蒸着して、正孔輸送層上に膜厚50 nmの電荷輸送能を持つ発光層を形成した。形成された膜の組成比が7:3となるように蒸着速度を調整し、この時の真空度は 10^{-5} Torr、ポート温度はそれぞれ約300 °Cであった。

30

【0184】

(実施例 23)

発光層の形成方法を以下のようにした以外は(実施例 3)と同様にして素子を作製した。

。

すなわち、発光材料として、昇華精製したAlq₃(例示番号VII-1)と、電荷輸送性材料〔例示化合物(V-1)〕をそれぞれ別のタングステンポートに入れ、真空蒸着法により共蒸着して、正孔輸送層上に膜厚50 nmの電荷輸送能を持つ発光層を形成した。形成された膜の組成比が7:3となるように蒸着速度を調整し、この時の真空度は 10^{-5} Torr、ポート温度はそれぞれ約300 °Cであった。

40

【0185】

(実施例 24)

発光層の形成方法を以下のようにした以外は(実施例 4)と同様にして素子を作製した。

。

すなわち、電荷輸送性材料として、電荷輸送性ポリウレタン〔例示化合物(XV-2)〕($Mw = 9.67 \times 10^4$)を0.3重量部と、発光性高分子として、上記例示化合物(XII、PPV系、 $Mw = 10^5$)を0.5重量部、さらに電荷輸送性材料〔例示化合物(V-1)〕を0.2重量部混合し、混合物の10重量%クロロベンゼン溶液を調製し、0.1 μm のポリテトラフルオロエチレン(PTFE)フィルターで濾過した。この溶液を用いて、バッファ層上にスピンコート法により塗布して膜厚80 nmの電荷輸送能を持つ発光層を形成した。

50

【 0 1 8 6 】

(比較例 1)

バッファ層を形成せず、ITO電極を形成したガラス基板上に直接発光層からの形成を行った以外は、実施例 1 と同様にして素子を作製した。

【 0 1 8 7 】

(比較例 2)

バッファ層を形成せず、ITO電極を形成したガラス基板上に直接正孔輸送層からの形成を行った以外は、実施例 2 と同様にして素子を作製した。

【 0 1 8 8 】

(比較例 3)

バッファ層を形成せず、ITO電極を形成したガラス基板上に直接正孔輸送層からの形成を行った以外は、実施例 3 と同様にして素子を作製した。

【 0 1 8 9 】

(比較例 4)

バッファ層を形成せず、ITO電極を形成したガラス基板上に直接電荷輸送能をもつ発光層からの形成を行った以外は、実施例 4 と同様にして素子を作製した。

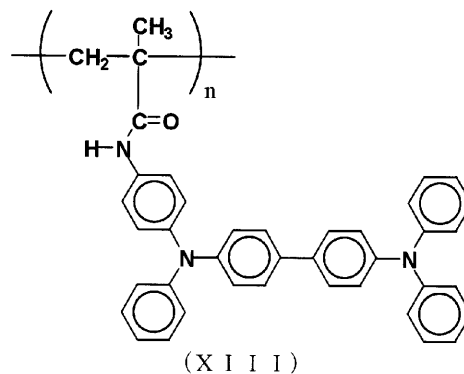
【 0 1 9 0 】

(比較例 5)

正孔輸送性材料として電荷輸送性ポリウレタンの代わりに、ビニル骨格を有する電荷輸送性高分子〔下記化合物 (X I I I)、 $M_w = 5.46 \times 10^4$ (スチレン換算)〕を用いた以外は、実施例 3 と同様にして素子を作製した。

【 0 1 9 1 】

【 化 2 3 】



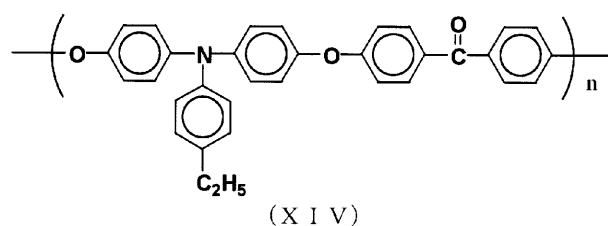
【 0 1 9 2 】

(比較例 6)

正孔輸送性材料として電荷輸送性ポリウレタンの代わりに、ポリカーボネート骨格を有する電荷輸送性高分子〔下記化合物 (X I V)、 $M_w = 7.83 \times 10^4$ (スチレン換算)〕を用いた以外は、実施例 3 と同様にして素子を作製した。

【 0 1 9 3 】

【 化 2 4 】



10

20

30

40

50

【 0 1 9 4 】

(比較例 7)

正孔輸送性材料として電荷輸送性ポリウレタンの代わりに、ビニル骨格を有する電荷輸送性高分子〔前記化合物 (X I I I)、 $M_w = 5.46 \times 10^4$ (スチレン換算) 〕を用いた以外は、実施例 4 と同様にして素子を作製した。

【 0 1 9 5 】

(比較例 8)

正孔輸送性材料として電荷輸送性ポリウレタンの代わりに、ポリカーボネート骨格を有する電荷輸送性高分子〔前記化合物 (X I V)、 $M_w = 7.83 \times 10^4$ (スチレン換算) 〕を用いた以外は、実施例 4 と同様にして素子を作製した。

10

【 0 1 9 6 】

(比較例 9)

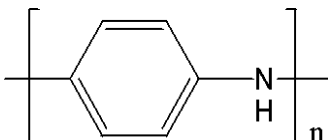
バッファ層用材料として下記化合物 (X X) ($M_w = 2 \times 10^5$) を用い、以下の方法によりバッファ層を形成した以外は (実施例 1) と同様にして素子を作製した。

すなわち、バッファ層形成用の溶液として、所望の膜厚が得られるように濃度を調整した下記化合物 (X X) の水分散液を、スピンコートで目開き $0.5 \mu m$ のポリテトラフルオロエチレン (P T F E) フィルターで濾過した。次に、この溶液を用いて、洗浄後乾燥させた I T O 電極付ガラス基板の I T O 電極が設けられた側の面上に、スピンコート法により塗布して膜厚 $20 nm$ のバッファ層を形成した。

20

【 0 1 9 7 】

【 化 2 5 】



(XX)

【 0 1 9 8 】

(比較例 1 0)

バッファ層用材料として上記化合物 (X X) ($M_w = 2 \times 10^5$) を用い、以下の方法によりバッファ層を形成した以外は (実施例 2) と同様にして素子を作製した。

30

すなわち、バッファ層形成用の溶液として、所望の膜厚が得られるように濃度を調整した上記化合物 (X X) の水分散液を、スピンコートで目開き $0.5 \mu m$ のポリテトラフルオロエチレン (P T F E) フィルターで濾過した。次に、この溶液を用いて、洗浄後乾燥させた I T O 電極付ガラス基板の I T O 電極が設けられた側の面上に、スピンコート法により塗布して膜厚 $20 nm$ のバッファ層を形成した。

【 0 1 9 9 】

(比較例 1 1)

バッファ層用材料として上記化合物 (X X) ($M_w = 2 \times 10^5$) を用い、以下の方法によりバッファ層を形成した以外は (実施例 3) と同様にして素子を作製した。

40

すなわち、バッファ層形成用の溶液として、所望の膜厚が得られるように濃度を調整した上記化合物 (X X) の水分散液を、スピンコートで目開き $0.5 \mu m$ のポリテトラフルオロエチレン (P T F E) フィルターで濾過した。次に、この溶液を用いて、洗浄後乾燥させた I T O 電極付ガラス基板の I T O 電極が設けられた側の面上に、スピンコート法により塗布して膜厚 $20 nm$ のバッファ層を形成した。

【 0 2 0 0 】

(比較例 1 2)

バッファ層用材料として上記化合物 (X X) ($M_w = 2 \times 10^5$) を用い、以下の方法によりバッファ層を形成した以外は (実施例 4) と同様にして素子を作製した。

50

すなわち、バッファ層形成用の溶液として、所望の膜厚が得られるように濃度を調整し

た上記化合物 (X X) の水分散液を、スピンコートで目開き $0.5 \mu\text{m}$ のポリテトラフルオロエチレン (P T F E) フィルターで濾過した。次に、この溶液を用いて、洗浄後乾燥させた I T O 電極付ガラス基板の I T O 電極が設けられた側の面上に、スピンコート法により塗布して膜厚 20 nm のパフファ層を形成した。

【 0 2 0 1 】

— 評価方法 —

以上のように作製した有機電界発光素子を、真空中 ($1.33 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ (10^{-5} Torr)) で I T O 電極側をプラス、M g - A g 背面電極をマイナスとして直流電圧を印加し、発光について測定を行い、このときの立ち上がり電圧、最高輝度、及び最高輝度時の駆動電流密度を評価した。それらの結果を表 1 に示す。また、乾燥窒素中で有機電界発光素子の素子寿命の測定を行った。素子寿命の評価は、初期輝度が 50 cd/m^2 となるように電流値を設定し、定電流駆動により輝度が初期値から半減するまでの時間を素子寿命 (h o u r) とした。この時の素子寿命も表 1 に示す。

10

【 0 2 0 2 】

【表 1】

	立ち上がり電圧 (V)	最高輝度 (cd/m ²)	駆動電流密度 (mA/cm ²)	素子寿命 (hour)
実施例1	3.2	1200	6.5	78
実施例2	2.3	1100	7.0	100
実施例3	2.5	1000	7.1	80
実施例4	2.4	1100	6.3	70
実施例5	3.5	1120	6.9	75
実施例6	2.6	1300	7.2	95
実施例7	2.7	900	7.3	83
実施例8	2.5	980	7.3	71
実施例9	2.4	1100	6.9	80
実施例10	2.5	1150	7.5	85
実施例11	2.7	1050	7.8	78
実施例12	2.5	1040	7.5	90
実施例13	2.4	980	7.3	95
実施例14	2.3	1000	6.9	85
実施例15	2.3	1200	7.5	80
実施例16	2.5	1100	7.8	87
実施例17	2.6	1200	7.2	88
実施例18	2.8	1150	7.5	90
実施例19	2.7	1000	7.2	95
実施例20	2.5	1100	7.3	97
実施例21	2.5	1150	7.4	100
実施例22	2.6	1100	7.8	85
実施例23	2.4	1150	7.0	84
実施例24	2.4	1050	7.1	88
比較例1	4.5	680	5.8	40
比較例2	3.4	800	5.0	40
比較例3	3.6	440	4.8	30
比較例4	4.0	400	6.0	30
比較例5	3.6	1080	7.0	50
比較例6	2.8	1150	6.8	60
比較例7	3.1	840	6.4	60
比較例8	3.0	940	6.2	40
比較例9	3.2	900	5.8	35
比較例10	3.3	920	5.7	38
比較例11	3.5	920	5.8	60
比較例12	3.4	890	5.4	50

【0203】

以上の結果から、本実施例は、比較例に比べ、電荷の注入性や電荷バランスが改善され、安定的で高輝度、高効率、長寿命な特性を示すことがわかる。

【図面の簡単な説明】

【0204】

【図1】本発明における表示装置の一例の模式的断面図である。

【図2】本発明における表示装置の一例の模式的断面図である。

【図3】本発明における表示装置の一例の模式的断面図である。

【図4】本発明における表示装置の一例の模式的断面図である。

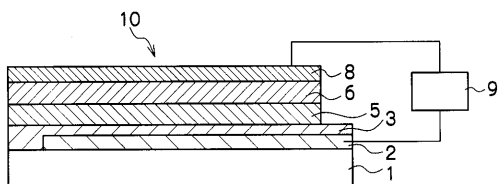
【符号の説明】

【0205】

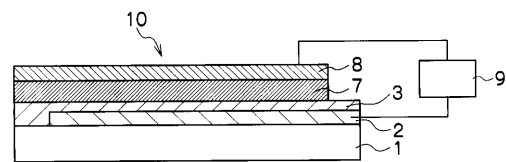
1 ... 透明絶縁体基板

- 2 ... 透明電極
- 3 ... バッファ層
- 4 ... 正孔輸送層
- 5 ... 発光層
- 6 ... 電子輸送層
- 7 ... キャリア輸送能を持つ発光層
- 8 ... 背面電極
- 9 ... 電圧印加装置
- 10 ... 有機電界発光素子

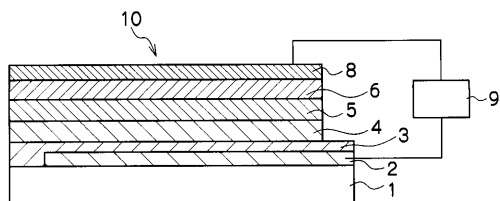
【図 1】



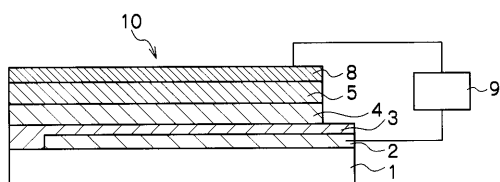
【図 4】



【図 2】



【図 3】



フロントページの続き

- (72)発明者 西野 洋平
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 奥田 大輔
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 石井 徹
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 堀場 幸治
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 関 三枝子
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 廣瀬 英一
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 尾崎 忠義
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 今井 彰
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 阿形 岳
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 真下 清和
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 佐藤 克洋
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC02 CC21 CC42 CC45 DD53 DD62 DD71 DD72
DD73 DD79 DD84 FF15
4J034 BA02 CA04 CB03 CB07 CC12 CC28 CC39 CC69 CD01 HA01
HA07 HC03 RA14 RA16

专利名称(译)	有机电致发光器件和显示器件		
公开(公告)号	JP2008305996A	公开(公告)日	2008-12-18
申请号	JP2007151983	申请日	2007-06-07
[标]申请(专利权)人(译)	富士施乐株式会社		
申请(专利权)人(译)	富士施乐株式会社		
[标]发明人	米山博人 西野洋平 奥田大輔 石井徹 堀場幸治 関三枝子 廣瀬英一 尾崎忠義 今井彰 阿形岳 真下清和 佐藤克洋		
发明人	米山 博人 西野 洋平 奥田 大輔 石井 徹 堀場 幸治 関 三枝子 廣瀬 英一 尾崎 忠義 今井 彰 阿形 岳 真下 清和 佐藤 克洋		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 C08G18/38		
FI分类号	H05B33/22.D H05B33/14.B C09K11/06.690 C08G18/38.Z C08G18/38.019 C08G18/78.050		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC02 3K107/CC21 3K107/CC42 3K107/CC45 3K107/DD53 3K107/DD62 3K107/DD71 3K107/DD72 3K107/DD73 3K107/DD79 3K107/DD84 3K107/FF15 4J034/BA02 4J034/CA04 4J034/CB03 4J034/CB07 4J034/CC12 4J034/CC28 4J034/CC39 4J034/CC69 4J034/CD01 4J034/HA01 4J034/HA07 4J034/HC03 4J034/RA14 4J034/RA16		
代理人(译)	中岛敦 福田浩		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：提供一种有机电致发光元件和显示装置，该有机电致发光元件和显示装置具有高亮度，优异的稳定性和耐久性，能够具有大面积并且易于制造。有机化合物层由包括发光层的一层或多层构成，有机化合物层中的至少一层包含至少一种电荷输送聚氨酯，并且缓冲层包含电荷输送聚氨酯。一种有机电致发光器件，其设置成与所述层和阳极中的至少一个接触，并包含选自无机氧化物，无机氮化物和无机氮氧化物中的至少一种电荷注入材料。[选择图]无

