

(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2016-213312

(P2016-213312A)

(43) 公開日 平成28年12月15日(2016.12.15)

(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 33/14 B	3 K 1 O 7
C O 9 K 11/06 (2006.01)	C O 9 K 11/06 6 6 O	4 C O 3 4
C O 7 D 409/04 (2006.01)	C O 7 D 409/04	4 C O 5 5
C O 7 D 401/14 (2006.01)	C O 7 D 401/14	4 C O 6 3
C O 7 D 403/10 (2006.01)	C O 7 D 403/10	4 C O 6 5
審査請求 未請求 請求項の数 10 O L (全 94 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2015-95448 (P2015-95448)
 (22) 出願日 平成27年5月8日 (2015.5.8)

(71) 出願人 000001270
 コニカミノルタ株式会社
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号
 (74) 代理人 110001254
 特許業務法人光陽国際特許事務所
 (72) 発明者 田中 達夫
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ
 ニカミノルタ株式会社内
 (72) 発明者 安川 則子
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ
 ニカミノルタ株式会社内
 (72) 発明者 服部 貴宗
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ
 ニカミノルタ株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、及び有機金属錯体

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】発光寿命及び素子駆動時の電圧上昇を改善し、かつ、素子駆動後のダークスポット発生を抑制することができる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及び有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。また、錯体の抗酸化作用を改善した有機金属錯体を提供する。

【解決手段】中性の有機金属錯体を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料であって、有機金属錯体は、分子内水素結合可能な置換基を有する配位子を少なくとも二つ有し、かつ、当該配位子の分子内水素結合可能な置換基一つが、同一の金属錯体分子を構成する他の配位子の分子内水素結合可能な置換基と水素結合を形成可能な位置に置換されている。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

中性の有機金属錯体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料であって、前記有機金属錯体は、分子内水素結合可能な置換基を有する配位子を少なくとも二つ有し、かつ、

当該配位子の分子内水素結合可能な置換基一つが、同一の金属錯体分子を構成する他の配位子の分子内水素結合可能な置換基と水素結合を形成可能な位置に置換されてい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用材料。

【請求項 2】

前記有機金属錯体を構成する配位子が、少なくとも三つである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用材料。

10

【請求項 3】

前記有機金属錯体を構成する三つの配位子が、分子内水素結合を形成していることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 4】

前記分子内水素結合可能な置換基が結合している配位子上の原子が、前記有機金属錯体の中心金属と共有結合した配位子上の原子に隣接していることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 5】

少なくとも 1 対の陽極と陰極の間に発光層を含む一つ又は複数の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

20

前記有機層のいずれかが、請求項 1 から請求項 4 までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含む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 6】

前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含むことを特徴とする請求項 5 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

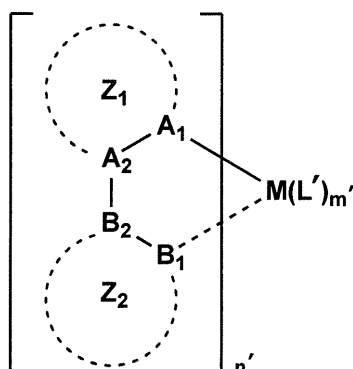
【請求項 7】

前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として、下記一般式 (DP) で表される構造を有するリン光発光性有機金属錯体を含むことを特徴とする請求項 5 又は請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

【化 1】

一般式(DP)



40

〔式中、Mは、Ir、Pt、Rh、Ru、Ag、Cu又はOsを表す。A₁、A₂、B₁、及びB₂は、各々、炭素原子又は窒素原子を表す。環Z₁は、A₁及びA₂と共に形成される6員の芳香族炭化水素環又は5員若しくは6員の芳香族複素環を表す。環Z₂は、B₁及びB₂と共に形成される5員又は6員の芳香族複素環を表す。環Z₁及び環Z₂は、置換基を有していてもよく、更に置換基同士が結合して縮環構造を形成していてもよい。また、各々の配位子の置換基が互いに結合して、配位子同士が連結していてもよい。L

50

’は、Mに配位したモノアニオン性の二座配位子を表す。m’は、0～2の整数を表す。n’は、1～3の整数を表す。m’+n’は、2又は3である。m’及びn’が2以上のとき、環Z₁及び環Z₂で表される配位子及びL’は各々同じでも異なってもよい。
]

【請求項8】

前記発光層に含有されるリン光発光性有機金属錯体として、Ir錯体が含有されていることを特徴とする請求項5から請求項7までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項9】

前記有機層が、ウェットプロセスで形成されたことを特徴とする請求項5から請求項8までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】

請求項1から請求項4までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に含有される有機金属錯体と同一の構造を有する有機金属錯体であって、

分子内水素結合可能な置換基を有する配位子を少なくとも二つ有し、かつ、

当該配位子の分子内水素結合可能な置換基一つが、同一の金属錯体分子を構成する他の配位子の分子内水素結合可能な置換基と水素結合を形成可能な位置に置換されていることを特徴とする有機金属錯体。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、及び有機金属錯体に関し、特に、発光寿命及び素子駆動時の電圧上昇の改善、素子駆動後のダークスポット発生を抑制することができる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及び有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。また、錯体の抗酸化作用を改善した有機金属錯体に関する。

【背景技術】

【0002】

代表的な有機エレクトロニクス材料である有機金属錯体（以下において、単に「金属錯体」ともいう。）は、電荷輸送材料、発光材料、有機半導体などとして様々な有機エレクトロニクス素子で利用されている。金属錯体の特性は、有機エレクトロニクス素子の性能に大きな影響を与えるため、素子特性を改良する手段の一つとして、目的に合った金属錯体を用意することは極めて重要である。しかしながら、有機化合物の性質は、構造、置換基などの組み合わせで劇的に変化することが多く、金属錯体もその例外ではない。

例えば、有機エレクトロニクス素子の一つである有機エレクトロルミネッセンス素子（以下において「有機EL素子」ともいう。）で発光材料として用いられる金属錯体は、素子の発光波長、寿命、生産性などを支配しており、これらの特性には多くの改善すべき課題が残されている。

【0003】

有機金属錯体は、中心金属と有機配位子から構成された化合物であり、これまで配位子の構造を変更することで素子に必要な特性を制御することに成功している。しかしながら、その手法は、配位子の基本骨格と置換基の無数の組み合わせの中から解を得るアプローチであり、必要な特性を得るための最適な方法とは言えない側面もあった。

【0004】

一方、近年特許文献1や特許文献2などでは、上記アプローチとは別に配位子の数に注目し、カゴ状の配位子を用いた新しいタイプの金属錯体を有機EL素子に用いる発明がなされている。

しかしながら、カゴ状の配位子は、合成が難しい上、構造の自由度が限られるため、中心金属と配位子の位置的な関係が最適なものとはならないケースが多く、金属錯体として十分な機能を有することができず、これらを含む素子の性能は必ずしも満足のいくレベル

10

20

30

40

50

には到達できていなかった。

【 0 0 0 5 】

したがって、有機エレクトロニクス素子材料として用いる有機金属錯体については、その合成が容易であり、かつ、例えば有機EL素子に用いたときに、発光寿命、素子駆動時の電圧上昇、素子駆動後のダークスポット発生等の諸々の性能・欠点等を一層改善できる有機金属錯体が要望されており、上記のような配位子の基本骨格と置換基の組み合わせや配位子の立体的構造の観点からのアプローチとは別の観点からのアプローチによる研究・開発が要望されている。

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

10

【 0 0 0 6 】

【 特許文献 1 】 国際公開第 2 0 1 1 / 0 0 4 6 3 9 号

【 特許文献 2 】 特開 2 0 0 9 - 2 6 7 2 5 5 号 公 報

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 0 7 】

本発明は、上記問題・状況に鑑みてなされたものであり、その解決課題は、発光寿命及び素子駆動時の電圧上昇を改善し、かつ、素子駆動後のダークスポット発生を抑制することができる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及び有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することである。また、錯体の抗酸化作用を改善した有機金属錯体を提供することである。

20

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 0 8 】

本発明者は、上記課題を解決すべく、配位子の基本骨格と置換基の無数の組み合わせの探索を脱却し、カゴ状配位子の欠点を改善できる新たな配位子の構造を検討し、これまで知られていなかった配位子相互間で分子内水素結合を形成可能な有機金属錯体に係る発明を完成するに至った。

すなわち、本発明に係る上記課題は、以下の手段により解決される。

【 0 0 0 9 】

1．中性の有機金属錯体を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料であって、

30

前記有機金属錯体は、分子内水素結合可能な置換基を有する配位子を少なくとも二つ有し、かつ、

当該配位子の分子内水素結合可能な置換基一つが、同一の金属錯体分子を構成する他の配位子の分子内水素結合可能な置換基と水素結合を形成可能な位置に置換されてい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用材料。

【 0 0 1 0 】

2．前記有機金属錯体を構成する配位子が、少なくとも三つであることを特徴とする第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【 0 0 1 1 】

40

3．前記有機金属錯体を構成する三つの配位子が、分子内水素結合を形成していることを特徴とする第1項又は第2項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【 0 0 1 2 】

4．前記分子内水素結合可能な置換基が結合している配位子上の原子が、前記有機金属錯体の中心金属と共有結合した配位子上の原子に隣接していることを特徴とする第1項から第3項までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【 0 0 1 3 】

5．少なくとも1対の陽極と陰極の間に発光層を含む一つ又は複数の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機層のいずれかが、第1項から第4項までのいずれか一項に記載の有機エレクト

50

ロルミネッセンス素子用材料を含有してい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。

【 0 0 1 4 】

6．前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有していることを特徴とする第5項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

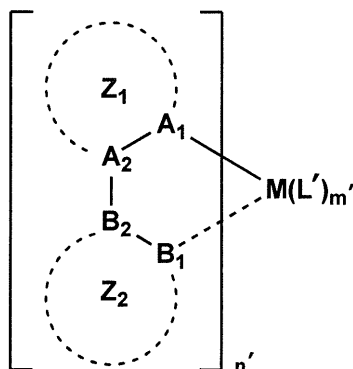
【 0 0 1 5 】

7．前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として、下記一般式(DP)で表される構造を有するリン光発光性有機金属錯体を含有していることを特徴とする第5項又は第6項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化1】

10

一般式(DP)



20

〔式中、Mは、Ir、Pt、Rh、Ru、Ag、Cu又はOsを表す。A₁、A₂、B₁、及びB₂は、各々、炭素原子又は窒素原子を表す。環Z₁は、A₁及びA₂と共に形成される6員の芳香族炭化水素環又は5員若しくは6員の芳香族複素環を表す。環Z₂は、B₁及びB₂と共に形成される5員又は6員の芳香族複素環を表す。環Z₁及び環Z₂は、置換基を有していてもよく、更に置換基同士が結合して縮環構造を形成していてもよい。また、各々の配位子の置換基が互いに結合して、配位子同士が連結していてもよい。L'は、Mに配位したモノアニオン性の二座配位子を表す。m'は、0～2の整数を表す。n'は、1～3の整数を表す。m' + n'は、2又は3である。m'及びn'が2以上のとき、環Z₁及び環Z₂で表される配位子及びL'は各々同じでも異なってもよい。〕

30

【 0 0 1 6 】

8．前記発光層に含有されるリン光発光性有機金属錯体として、Ir錯体が含有されていることを特徴とする第5項から第7項までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 0 0 1 7 】

9．前記有機層が、ウェットプロセスで形成されたことを特徴とする第5項から第8項までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 0 0 1 8 】

40

10．第1項から第4項までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に含有される有機金属錯体と同一の構造を有する有機金属錯体であって、

分子内水素結合可能な置換基を有する配位子を少なくとも二つ有し、かつ、

当該配位子の分子内水素結合可能な置換基一つが、同一の金属錯体分子を構成する他の配位子の分子内水素結合可能な置換基と水素結合を形成可能な位置に置換されていることを特徴とする有機金属錯体。

【発明の効果】

【 0 0 1 9 】

本発明の上記手段により、発光寿命及び素子駆動時の電圧上昇を改善し、かつ、素子駆動後のダークスポット発生を抑制することができる有機エレクトロルミネッセンス素子用

50

材料及び有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することができる。また、錯体の抗酸化作用を改善した有機金属錯体を提供することができる。

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

錯体の安定性を改善する手段の一つとして、例えば、二つの配位子と中心金属錯体で形成された錯体の場合に、配位子同士を連結させて一つの配位子と中心金属で形成された錯体とする手法がある。

錯体の構成要素を削減して、錯体の安定性（耐分解性）を向上させる原理はエントロピーの変化で説明することができる。以下に、錯体の構成要素数を削減して、エントロピー効果を利用して錯体の安定性に活用している例を説明する。

10

【 0 0 2 0 】

表 A に、各種カドミウムのアミン錯体の錯安定度を熱力学パラメータに分解して記載した。

【 0 0 2 1 】

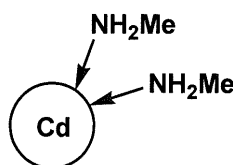
【表 A】

No.	錯体化合物	$\log \beta$ (kJ/mol)	$-\Delta G^0$ (kJ/mol)	$-\Delta H^0$ (kJ/mol)	$T\Delta S^0$ (kJ/mol)
1	$\text{Cd}(\text{NH}_2)_2^{2+}$	4.95	28.2	29.8	-1.5
2	$\text{Cd}(\text{MeNH}_2)_2^{2+}$	4.81	27.4	29.4	-1.9
3	$\text{Cd}(\text{H}_2\text{NC}_2\text{H}_4\text{NH}_2)$	5.84	33.3	29.4	3.9

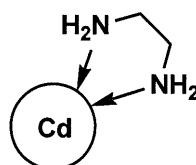
20

【 0 0 2 2 】

【化 2】

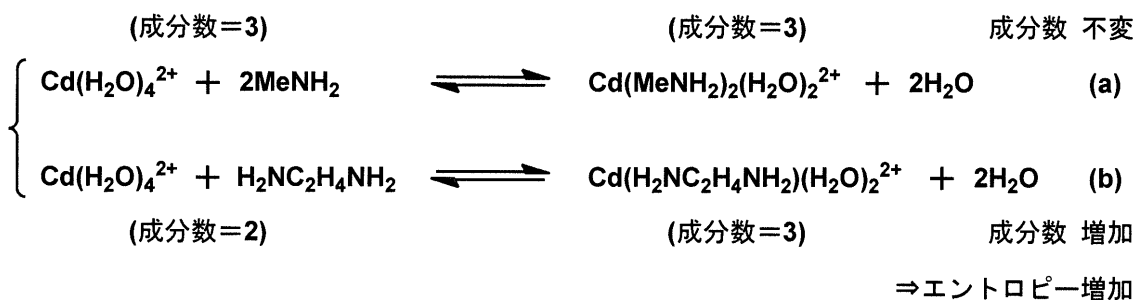


No.2



No.3

30



40

【 0 0 2 3 】

例えば、キレート錯体である No. 3 の錯体（カドミウムエチレンジアミン錯体）と、非キレート錯体である No. 2 の錯体（カドミウム 2 メチルアミン錯体）とを比較すると、どちらもエンタルピー（吸着力と解釈してもよい）は同じであるのに対し、エントロピーは大きく異なる。このエントロピー項の差、すなわち 5.8 kJ/mol がキレートと非キレートの安定度の差であり、これは No. 2 の錯体が持つギブスの自由エネルギーの 21% に相当する大きな安定化エネルギーである。

【 0 0 2 4 】

キレート錯体が安定であることは感覚的にも理解でき、一般にもその安定性は広く知られているが、この源泉のほとんどがエントロピーの効果であることは意外に知られてい

50

い。では、このエントロピー効果はどこから発現されるのだろうか。エントロピーはボルツマン分布と成分数の積で表すこともできる。キレート錯体の場合、この成分数の変化で考えるとわかりやすい。

【0025】

式(a)に示したように、No. 2の非キレート錯体の場合は錯形成前の成分数が3であり、錯形成後の成分数も3である。これに対し式(b)に示したように、No. 3のキレート錯体の場合、錯形成前の成分数は2で錯形成後の成分数は3となり、成分数が増加することがわかる。すなわちエントロピーが増大することになる。

【0026】

次に、このキレート錯体形成がどのくらい耐久性に影響するかを具体例を挙げて説明する(KONICA TECHNICAL REPORT p. 83 - p. 86, vol. 14 (2001) 参照。)。

10

【0027】

キレート型染料転写方式のプリント材料であるコニカフォトキレート(登録商標)は、配位子になりうる構造を持つ色素が、受像層に存在する金属イオン化合物に、拡散転写された際にキレート形成反応が起こり、それによってキレート色素が形成され固定化される画像形成方式であるが、この形成された画像色素(キレート錯体色素)は固定化のみならず、耐光性や耐熱性が改良される高耐久性プリントとなる。

【0028】

この効果を図7(A)と図7(B)の比較により示す。図7は、キレート錯体色素を用いたカラー画像堅牢性を示す一例である。図7は65における暗褪色実験の結果でC、M、Yで表されるそれぞれシアン色素、マゼンタ色素及びイエロー色素の濃度変化を示している。図7(A)がキレート錯体色素を用いたコニカフォトキレート、図7(B)が一般的な通常染料熱転写の場合であるが、その差は一目瞭然であり、高温保存下においてもフォトキレートの画像色素は褪色することなく存在していることがわかる。

20

【0029】

すなわち、フォトキレートの方が、もともと画像を形成した段階でその色素を含有する膜が有するエントロピーが大きくなっていて、エントロピー効果が膜の安定性を産み出し、結果として画像保存性という産業上の要求を満たすものになっていると考えることができる。

30

【0030】

このように、エントロピー効果を有効に活用することで、有機材料を主成分として形成される膜は、その初期状態でのギブスの自由エネルギーを増大することが可能であり、その増大効果は長期間や高温の保存という過酷な劣化条件の中でも十分に変動を押さえ込めるほど大きなものであるといえる。

【0031】

上述したように、従来は配位子間を共有結合で結び、錯体形成時の配位子の個数を減少させることにより生じるエントロピー効果により、錯体の安定性を高める手法がとられていた。本発明者らは、錯体の安定性をより高める手法について鋭意検討した結果、配位子間を分子内水素結合で結ぶことで、共有結合で結ばれている有機金属錯体よりも高安定性が得られ、その結果、有機金属錯体の抗酸化作用が改善され、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及び有機エレクトロルミネッセンス素子に前記有機金属錯体を用いた場合、発光寿命及び素子駆動時の電圧上昇を改善し、かつ、素子駆動後のダークスポット発生が抑制されることを知見し、本発明に至った。

40

例えば、ヒドロキシ基を持つ金属錯体のヒドロキシ基が、偶然分子内水素結合を形成できる位置に配置された例はこれまでも得られていた可能性は高いが、その効果について検討した事例はなく、本発明で初めて上述した効果が解明され、発明が完成されたと考えている。

【0032】

錯体の配位子同士の分子内水素結合について、化合物例及び比較の化合物を例に説明す

50

る。

従来知られている有機 E L 用ドーパントである比較 1 は、ドーパントとしては優れた特性を有しており、配位子と中心金属の配置については良好な位置関係を保っていると考えられる。一方、比較 2 は、共有結合で配位子同士を結合している構造であるために、金属錯体全体で考えると構造が歪んでしまい、配位子と中心金属が良好な位置関係を保つことが難しい。これに対し、本発明の化合物は、分子内水素結合を形成可能な位置に水素結合性置換基を有し、共有結合に比べ自由度の高い分子内水素結合を配位子間の結合手段として用いているため、比較 1 の配位子と中心金属の位置関係を保つ構造を維持できると考えられる。以上から、比較 1 の特性を生かしつつ、エントロピー効果による安定化を発揮できる構造としては、分子内水素結合を利用した本発明の化合物が必要となる。

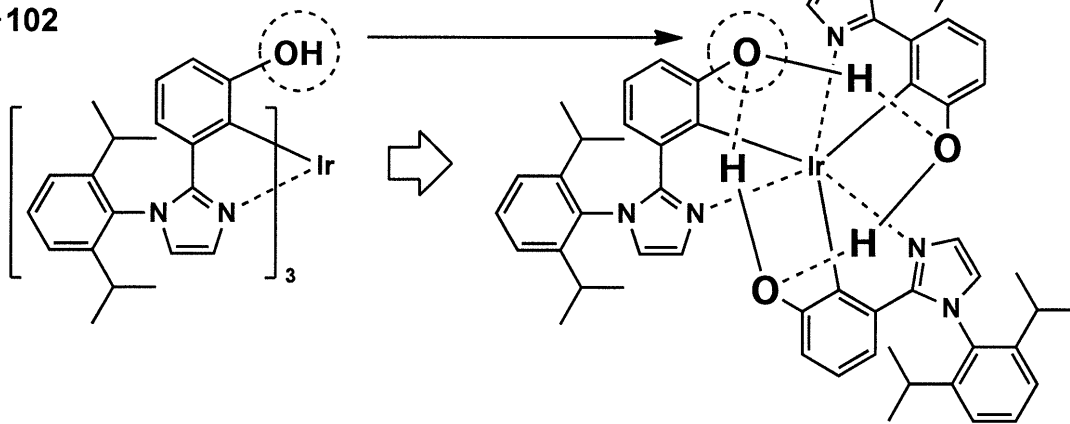
10

なお、下記は模式図ではあるが、後述の分子計算による分子構造の検討によっても同様の効果を確認できる。

【 0 0 3 3 】

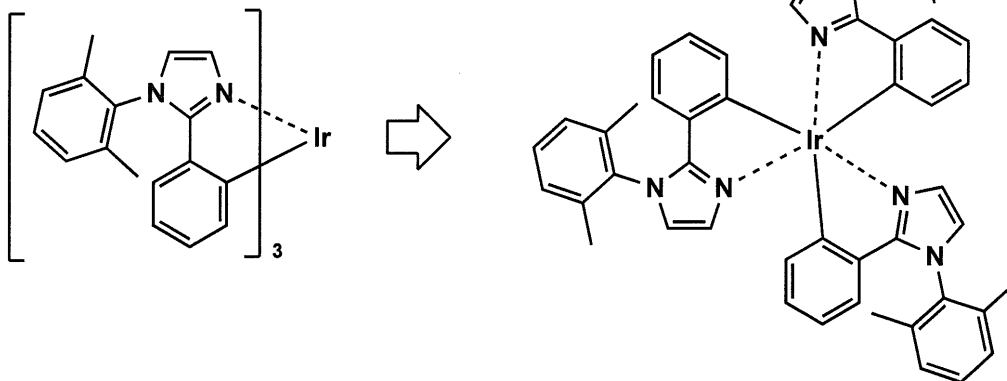
【化 3】

D-102



10

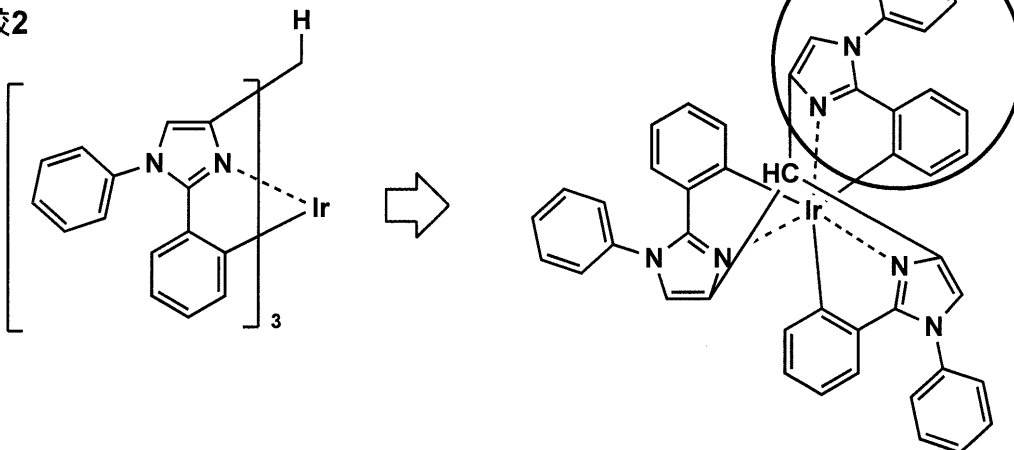
比較1



20

30

比較2



40

【図面の簡単な説明】

【0034】

【図1】有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図

50

【図 2】アクティブマトリクス方式による表示装置の模式図

【図 3】画素の回路を示した概略図

【図 4】パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図

【図 5】照明装置の概略図

【図 6】照明装置の模式図

【図 7】キレート錯体色素を用いたカラー画像堅牢性を示す一例

【図 8】化合物 D - 102 の NMR スペクトルチャート

【図 9】化合物 D - 102 の熱分析チャート

【発明を実施するための形態】

【0035】

10

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、中性の有機金属錯体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料であって、前記有機金属錯体は、分子内水素結合可能な置換基を有する配位子を少なくとも二つ有し、かつ、当該配位子の分子内水素結合可能な置換基一つが、同一の金属錯体分子を構成する他の配位子の分子内水素結合可能な置換基と水素結合を形成可能な位置に置換されていることを特徴とする。

この特徴は、請求項 1 から請求項 10 までの請求項に係る発明に共通又は対応する技術的特徴である。

【0036】

本発明の実施形態としては、種々の形態を採り得るが、本発明の効果発現の観点から、前記有機金属錯体を構成する配位子が、三つであることが好ましい。

20

また、前記有機金属錯体を構成する三つの配位子が、分子内水素結合を形成していることが、当該有機金属錯体の安定性等の観点から好ましい。

更に、前記分子内水素結合可能な置換基が結合している配位子上の原子が、前記有機金属錯体の中心金属と共有結合した配位子上の原子に隣接していることが、当該有機金属錯体の一層の安定性及び合成の容易性等の観点から好ましい。

【0037】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、少なくとも 1 対の陽極と陰極の間に発光層を含む一つ又は複数の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層のいずれかが、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含むことを特徴とする。

30

本発明の実施形態としては、種々の形態を採り得るが、本発明の効果発現の観点から、前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含むことが好ましい。

また、前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として、前記一般式 (DP) で表される構造を有するリン光発光性有機金属錯体を含むことが、当該リン光有機金属錯体の安定性等の観点から、好ましい。

また、前記発光層に含有されるリン光発光性有機金属錯体として、Ir 錯体が含有されていることが、本発明の効果が一層顕著に発現されることから、好ましい。

更に、前記有機層が、ウェットプロセスで形成されたことが好ましい。

【0038】

40

本発明の有機金属錯体は、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に含有される有機金属錯体と同一の構造を有する有機金属錯体であって、分子内水素結合可能な置換基を有する配位子を少なくとも二つ有し、かつ当該配位子の分子内水素結合可能な置換基一つが、同一の金属錯体分子を構成する他の配位子の分子内水素結合可能な置換基と水素結合を形成可能な位置に置換されていることを特徴とする。

【0039】

以下、本発明とその構成要素、及び本発明を実施するための形態・態様について詳細な説明をする。なお、本願において、「～」は、その前後に記載される数値を下限値及び上限値として含む意味で使用する。

【0040】

50

[有機エレクトロルミネッセンス素子用材料]

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料（以下、単に「有機 E L 素子用材料」ともいう。）は、中性の有機金属錯体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料であって、前記有機金属錯体は、分子内水素結合可能な置換基を有する配位子を少なくとも二つ有し、かつ、当該配位子の分子内水素結合可能な置換基一つが、同一の金属錯体分子を構成する他の配位子の分子内水素結合可能な置換基と水素結合を形成可能な位置に置換されていることを特徴とする。

【 0 0 4 1 】

本発明において、水素結合とは、電気陰性度が大きな原子（陰性原子）に共有結合で結びついた水素原子が、近傍に位置した窒素、酸素、硫黄、フッ素、 π 電子系などの孤立電子対とつくる非共有結合性の引力的相互作用である。水素結合には、異なる分子の間に働くもの（分子間力）と単一の分子の異なる部位の間（分子内）に働くものがある

10

本発明では、分子内で形成される水素結合、すなわち金属錯体分子内で形成可能な水素結合を対象としている。発明の錯体は分子量が比較的大きく、構造も複雑なものが多いため、例えば DNA やタンパク質分子内で形成される水素結合を参考にすると考えやすい。具体的には、水素結合の働く置換基同士の距離は、DNA では 500 pm 以下程度、より具体的には 400 pm 程度以下である場合が多く、本発明でも水素結合形成可能な置換基の相対距離についてこの値を参考にすることができる。例えば、酸素原子（A）と水素原子から形成されるヒドロキシ基と別の置換基の酸素原子（B）の間で水素結合を形成する場合は、酸素原子（A）と酸素原子（B）の間の相対距離を考慮することとなる。前記相対距離は、分子軌道計算（gaussian 09）などを用いて求めることができる。

20

【 0 0 4 2 】

《一般式（DP）で表される構造を有する化合物》

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、中性の有機金属錯体を含む有機エレクトロルミネッセンス素子用材料であって、当該有機金属錯体が、下記一般式（DP）で表される構造を有する化合物であることが好ましい。

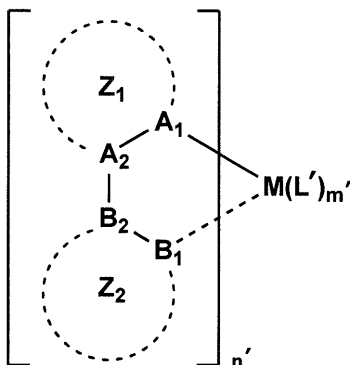
なお、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、本発明の効果を阻害しない範囲内において、下記一般式（DP）で表される構造を有する化合物以外の化合物を含むしてもよい。

30

【 0 0 4 3 】

【化 4】

一般式(DP)



40

〔式中、Mは、Ir、Pt、Rh、Ru、Ag、Cu又はOsを表す。A₁、A₂、B₁、及びB₂は、各々、炭素原子又は窒素原子を表す。環Z₁は、A₁及びA₂と共に形成される6員の芳香族炭化水素環又は5員若しくは6員の芳香族複素環を表す。環Z₂は、B₁及びB₂と共に形成される5員又は6員の芳香族複素環を表す。環Z₁及び環Z₂は、置換基を有していてもよく、更に置換基同士が結合して縮環構造を形成していてもよい。また、各々の配位子の置換基が互いに結合して、配位子同士が連結していてもよい。L

50

' は、Mに配位したモノアニオン性の二座配位子を表す。m' は、0 ~ 2の整数を表す。
n' は、1 ~ 3の整数を表す。m' + n' は、2又は3である。m' 及びn' が2以上の
とき、環Z₁ 及び環Z₂ で表される配位子及びL' は各々同じでも異なってもよい。
]

【0044】

環Z₁ が、6員の芳香族炭化水素環を表す場合、当該6員の芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環が、当該6員の芳香族炭化水素環に更に芳香族炭化水素環が縮合した例としてナフタレン環、アントラセン環等が挙げられる。

環Z₁ が、5員又は6員の芳香族複素環を表す場合、5員の芳香族複素環としては、例えば、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、オキサジアゾール環及びチアジアゾール環等が挙げられる。

これらのうちで好ましいものは、ピラゾール環、イミダゾール環であり、更に好ましくはイミダゾール環である。これらの環は下記置換基群から選ばれる置換基によって更に置換されていてよい。置換基として好ましいものは、アルキル基及びアリール基であり、更に好ましくは、置換アルキル基及び無置換アリール基である。

また、6員の芳香族複素環としては、ピリジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラジン環等を挙げることができる。

【0045】

環Z₂ は、好ましくは5員の芳香族複素環であり、5員の芳香族複素環としては、環Z₁ で示した5員の芳香族複素環が挙げられる。特に、B₁ 及びB₂ は少なくとも一方が窒素原子であることが好ましい。

【0046】

環Z₁ 及び環Z₂ が有してもよい置換基としては、例えば、アルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等）、シクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（例えば、ビニル基、アリール基等）、アルキニル基（例えば、エチニル基、プロパルギル基等）、芳香族炭化水素環基（芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ピフェニル基等）、芳香族複素環基（例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基（例えば、1, 2, 4-トリアゾール-1-イル基、1, 2, 3-トリアゾール-1-イル基等）、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等）、複素環基（例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホリル基、オキサゾリジル基等）、アルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等）、シクロアルコキシ基（例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等）、アリールオキシ基（例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等）、アルキルチオ基（例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等）、シクロアルキルチオ基（例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等）、アリールチオ基（例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等）、アルコキシカルボニル基（例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシ

10

20

30

40

50

ルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等)、アシル基(例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等)、アシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等)、アミド基(例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等)、カルバモイル基(例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基、ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等)、スルフィニル基(例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリールスルホニル基又はヘテロアリールスルホニル基(例えば、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)等が挙げられる。

これらの置換基のうち、好ましいものはアルキル基又はアリール基である。

【0047】

更に、置換基同士が結合して縮環構造を形成していてもよい。また、各々の配位子の置換基が互いに結合して、配位子同士が連結していてもよい。

L'は、Mに配位したモノアニオン性の二座配位子を表す。モノアニオン性の二座配位子の例としては、例えば、置換基を有するフェニルピリジン、フェニルピラゾール、フェニルイミダゾール、フェニルトリアゾール、フェニルテトラゾール、ピラザボール、ピコリン酸及びアセチルアセトン等が挙げられる。

m'は、0~2の整数を表す。n'は、1~3の整数を表す。m'+n'は、2又は3である。m'及びn'が2以上のとき、環Z₁及び環Z₂で表される配位子及びL'は各々同じでも異なってもよい。

Mは、Ir、Pt、Rh、Ru、Ag、Cu又はOsを表す。中でも、イリジウム(Ir)、白金(Pt)が好ましく、更に好ましくはイリジウムである。

【0048】

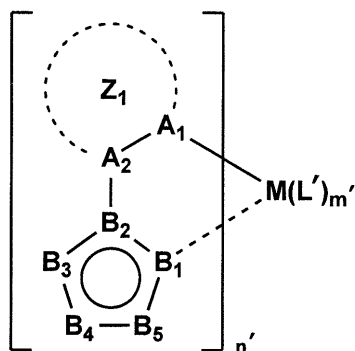
また、一般式(DP)は、好ましくは下記一般式(DP-1)又は(DP-2)で表さ

れる。

【 0 0 4 9 】

【 化 5 】

一般式(DP-1)



10

一般式 (D P - 1) において、M、 A_1 、 A_2 、 B_1 、 B_2 、環 Z_1 、 L' 、 m' 及び n' は、一般式 (D P) における M、 A_1 、 A_2 、 B_1 、 B_2 、環 Z_1 、 L' 、 m' 及び n' と同義である。

$B_3 \sim B_5$ は、芳香族複素環を形成する原子群であり、置換基を有していてもよい炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表す。 $B_3 \sim B_5$ が有する置換基としては、前述の一般式 (D P) における環 Z_1 及び環 Z_2 が有する置換基と同義の基が挙げられる。

20

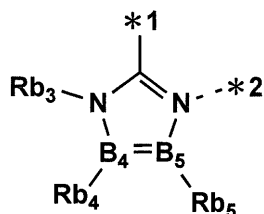
【 0 0 5 0 】

一般式 (D P - 1) において、 $B_1 \sim B_5$ で形成される芳香族複素環は、下記一般式 (D P - 1 a)、(D P - 1 b) 及び (D P - 1 c) のいずれかで表されることが好ましい。

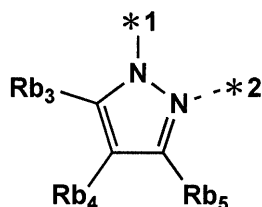
【 0 0 5 1 】

【 化 6 】

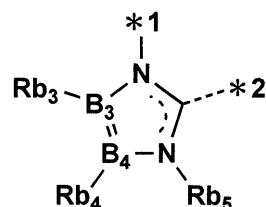
一般式(DP-1a)



一般式(DP-1b)



一般式(DP-1c)



30

一般式 (D P - 1 a)、(D P - 1 b) 及び (D P - 1 c) において、* 1 は、 A_2 との結合部位を表し、* 2 は、M との結合部位を表す。

$Rb_3 \sim Rb_5$ は、水素原子又は置換基を表し、 $Rb_3 \sim Rb_5$ で表される置換基としては、前述の一般式 (D P) における環 Z_1 及び環 Z_2 が有する置換基と同義の基が挙げられる。

40

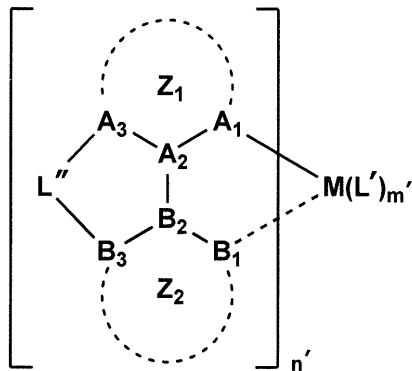
一般式 (D P - 1 a) における B_4 及び B_5 は、炭素原子又は窒素原子であり、より好ましくは少なくとも一つは炭素原子である。

一般式 (D P - 1 c) における B_3 及び B_4 は、炭素原子又は窒素原子であり、より好ましくは少なくとも一つは炭素原子である。

【 0 0 5 2 】

【化 7】

一般式(DP-2)



10

一般式(DP-2)において、M、A₁、A₂、B₁、B₂、環Z₁、L'、m'及びn'は、一般式(DP)におけるM、A₁、A₂、B₁、B₂、環Z₁、L'、m'及びn'は、と同義である。

環Z₂は、B₁～B₃と共に形成される5員の芳香族複素環を表す。

A₃及びB₃は、炭素原子又は窒素原子を表す。L''は、2価の連結基を表す。

【0053】

L''で表される2価の連結基としては、例えば、アルキレン基、アルケニレン基、アリーレン基、ヘテロアリーレン基、2価の複素環基、-O-、-S-、又はこれらを任意に組み合わせた連結基等が挙げられる。

20

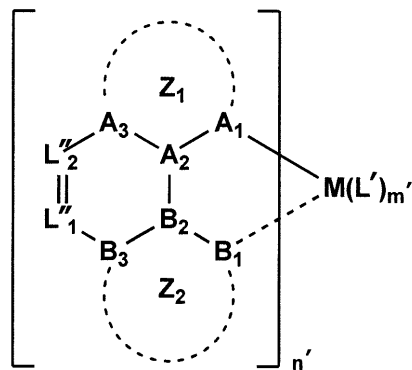
【0054】

一般式(DP-2)は、更に一般式(DP-2a)で表されることが好ましい。

【0055】

【化 8】

一般式(DP-2a)



30

一般式(DP-2a)において、M、A₁、A₂、B₁、B₂、環Z₁、環Z₂、L'、m'及びn'は、一般式(DP-2a)におけるM、A₁、A₂、B₁、B₂、環Z₁、環Z₂、L'、m'及びn'と同義である。

40

L''₁及びL''₂は、C-Rb₆又は窒素原子を表す。Rb₆は、水素原子又は置換基を表す。L''₁及びL''₂が、C-Rb₆の場合は、Rb₆同士が互いに結合し環を形成してもよい。

【0056】

一般式(DP)、(DP-1)、(DP-2)及び(DP-2a)におけるA₂が炭素原子であることが好ましく、更にA₁が炭素原子であることが好ましい。より好ましくは、環Z₁が置換又は無置換のベンゼン環又はピリジン環であり、更に好ましくはベンゼン環である。

【0057】

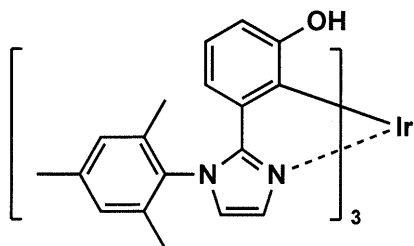
50

《一般式 (D P) で表される構造を有する化合物の具体例》

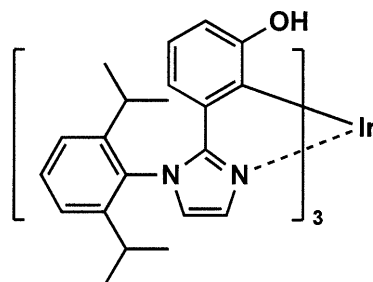
本発明の上記一般式 (D P) で表される構造を有する化合物の具体例を示す。本発明は、これらに限定されるものではない。

【化 9】

D-101

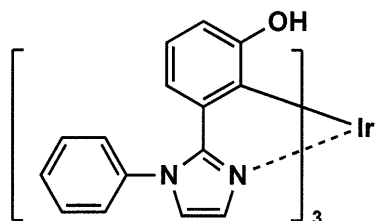


D-102

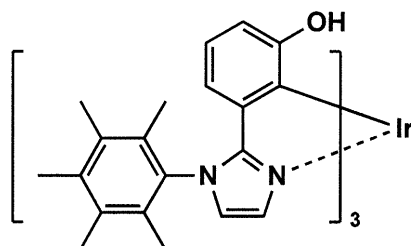


10

D-103

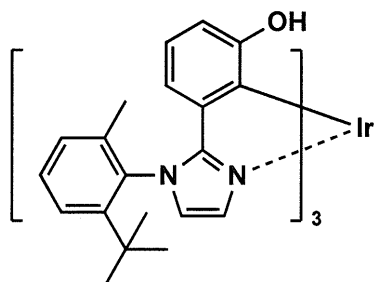


D-104

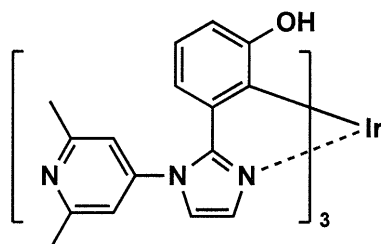


20

D-105

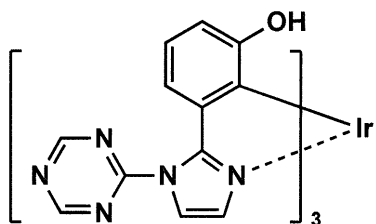


D-106

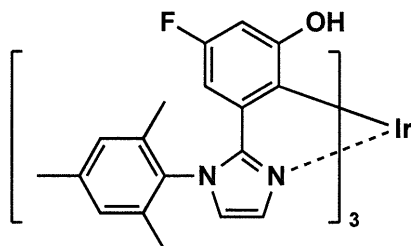


30

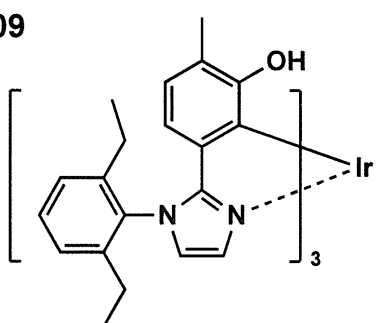
D-107



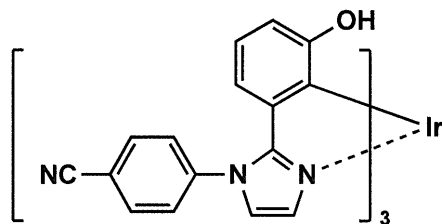
D-108



D-109



D-110

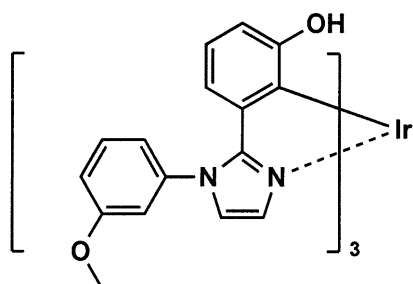


40

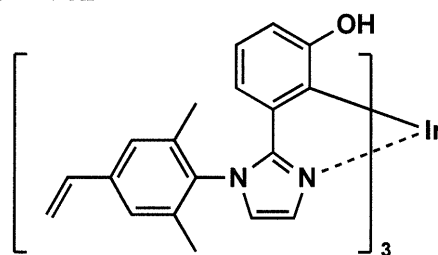
【 0 0 5 8 】

【化 1 0】

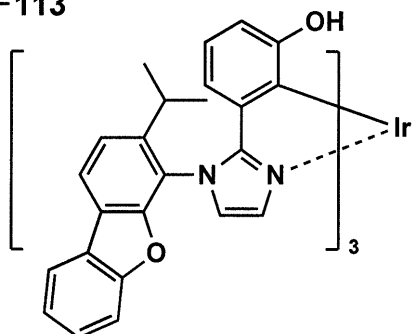
D-111



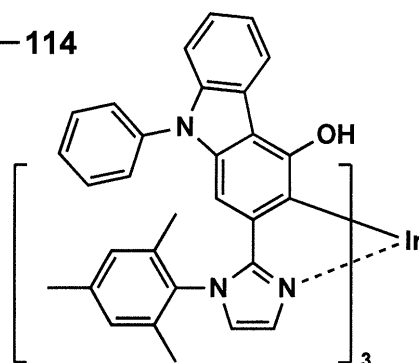
D-112



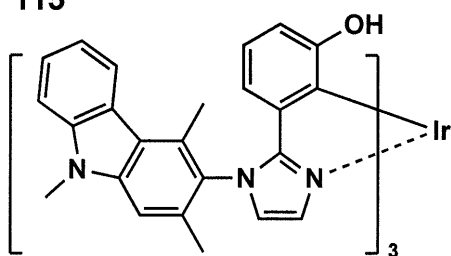
D-113



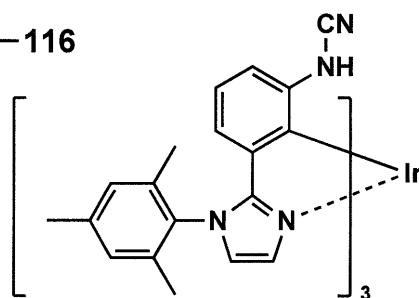
D-114



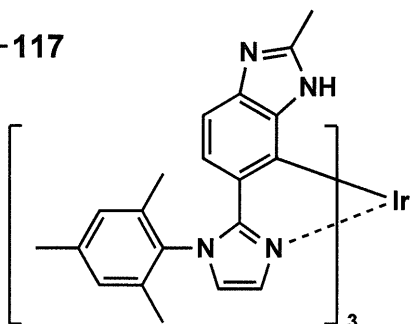
D-115



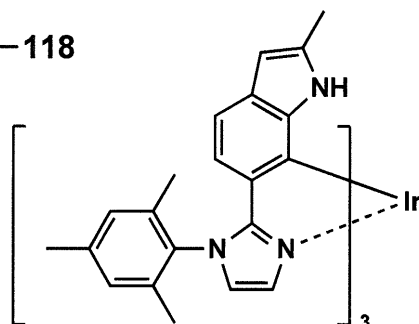
D-116



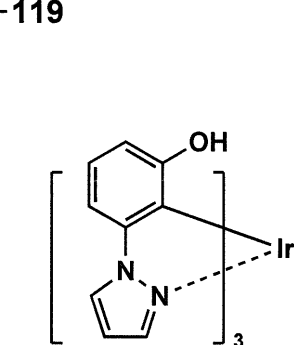
D-117



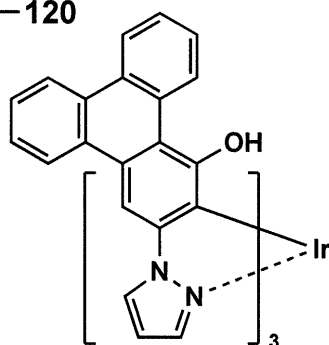
D-118



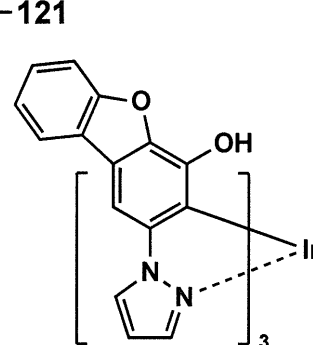
D-119



D-120



D-121



【 0 0 5 9】

10

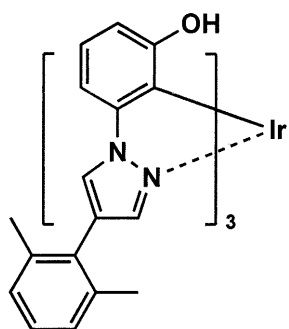
20

30

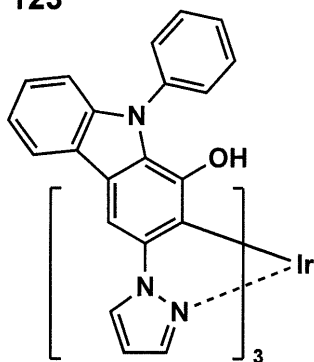
40

【化 1 1】

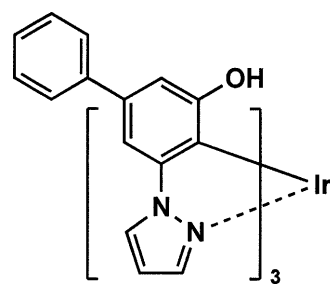
D-122



D-123

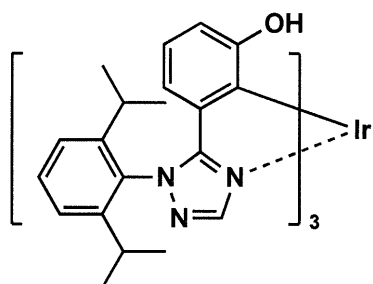


D-124

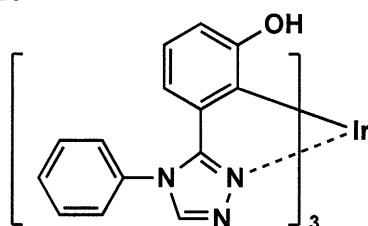


10

D-125

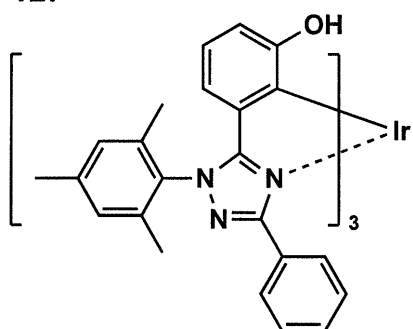


D-126

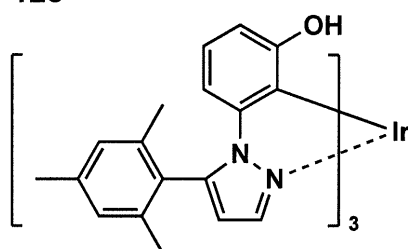


20

D-127

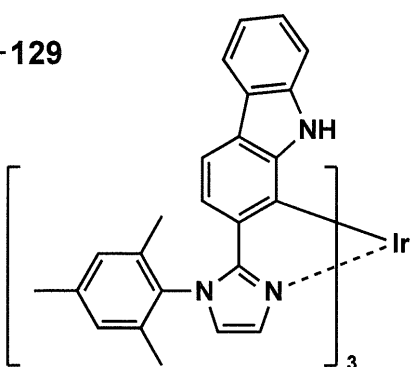


D-128

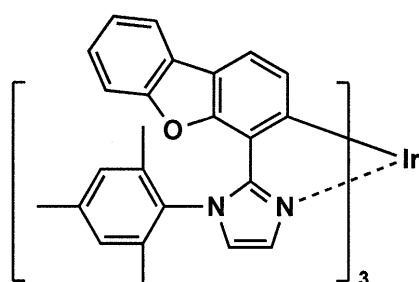


30

D-129



D-130

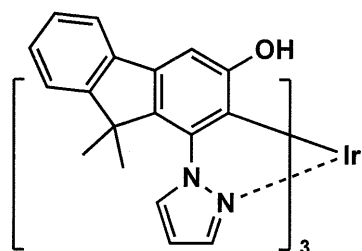


40

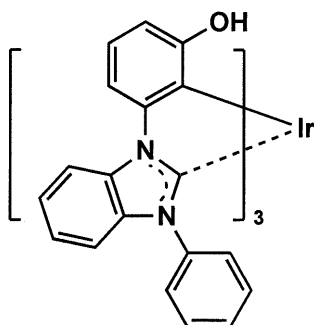
【 0 0 6 0 】

【化 1 2】

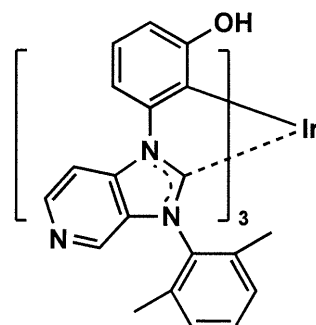
D-131



D-132

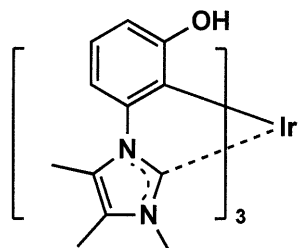


D-133

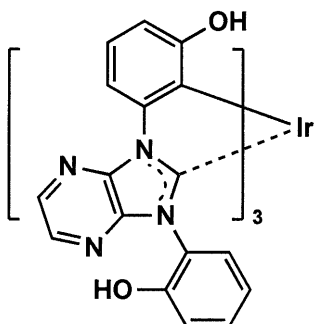


10

D-134

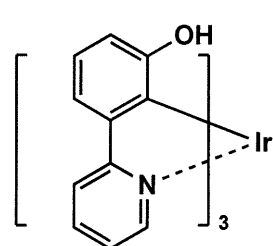


D-135

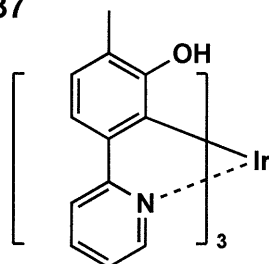


20

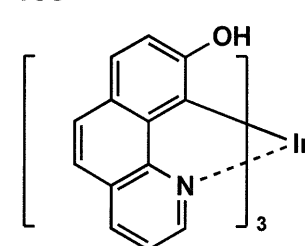
D-136



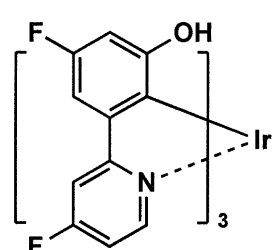
D-137



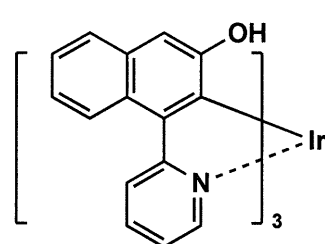
D-138



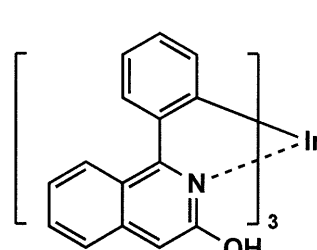
D-139



D-140

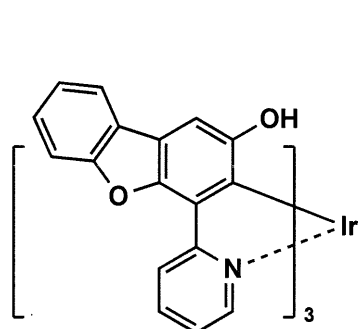


D-141

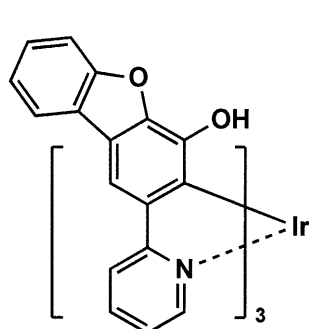


30

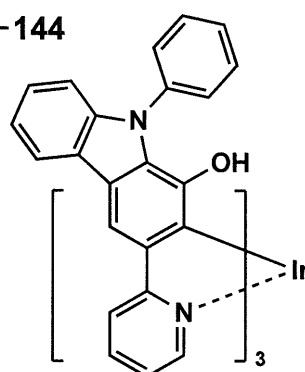
D-142



D-143



D-144

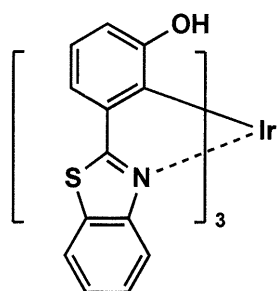


40

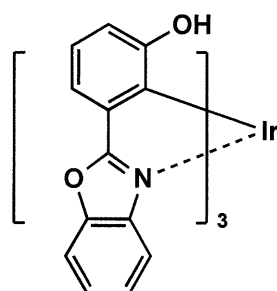
【 0 0 6 1 】

【化 1 3】

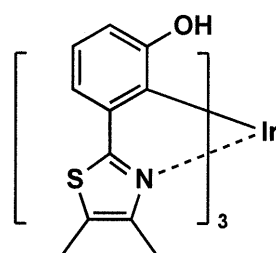
D-145



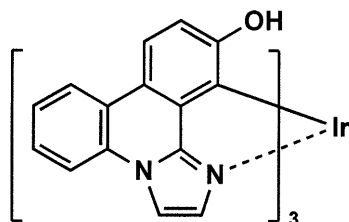
D-146



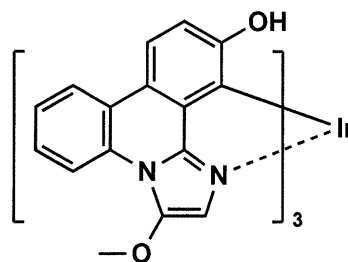
D-147



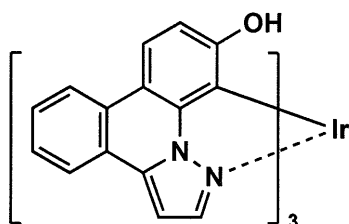
D-148



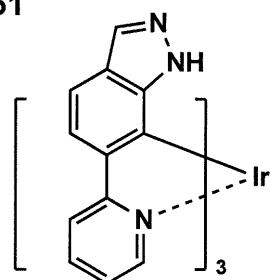
D-149



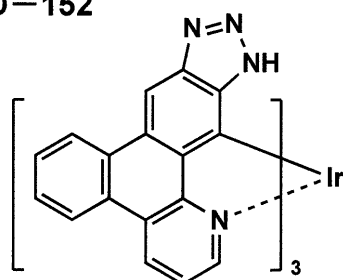
D-150



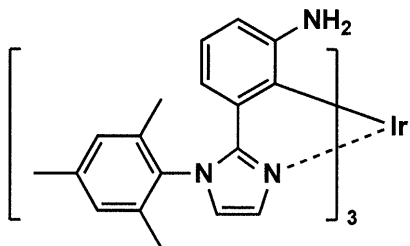
D-151



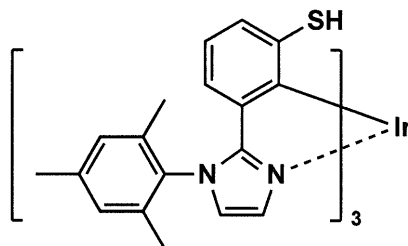
D-152



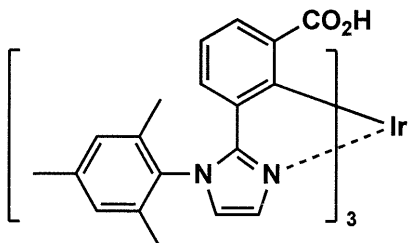
D-153



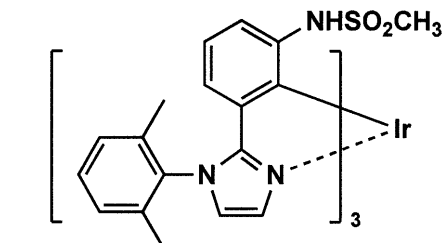
D-154



D-155



D-156



【 0 0 6 2】

10

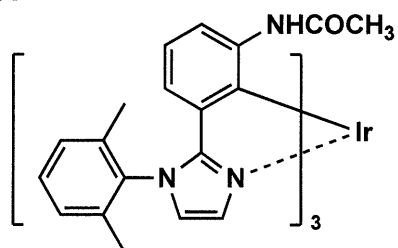
20

30

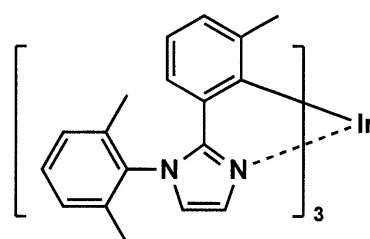
40

【化 1 4】

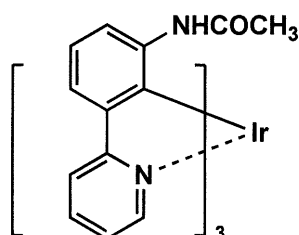
D-157



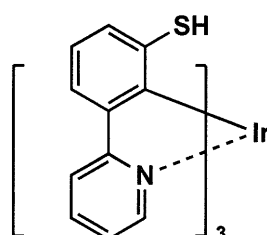
D-158



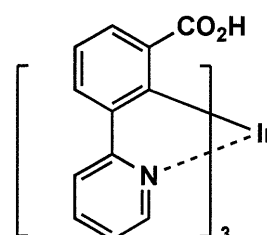
D-159



D-160

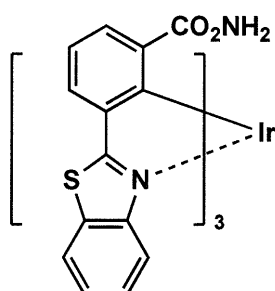


D-161

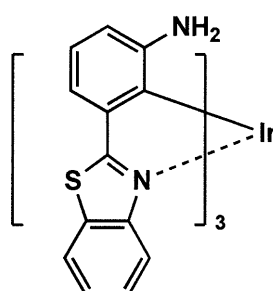


10

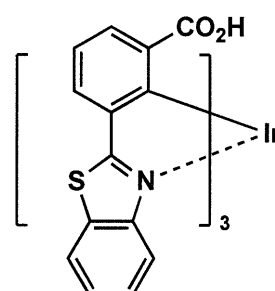
D-162



D-163

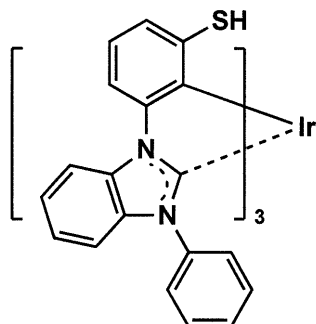


D-164

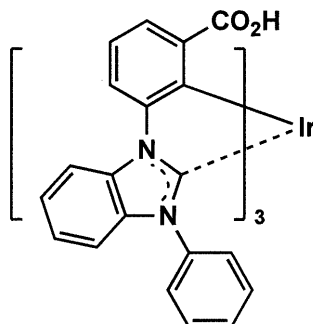


20

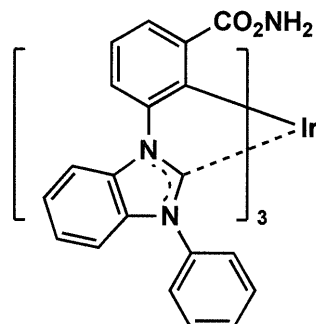
D-165



D-166

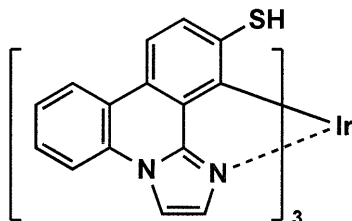


D-167

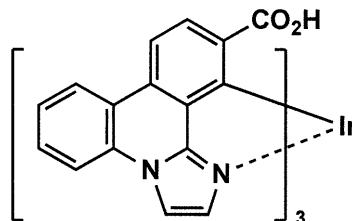


30

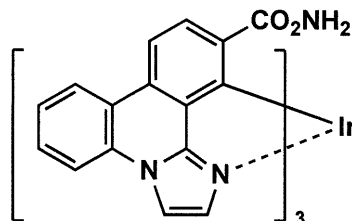
D-168



D-169



D-170

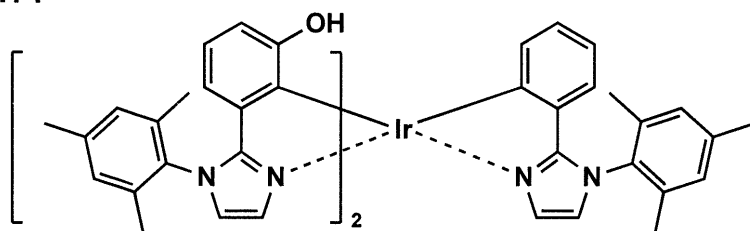


40

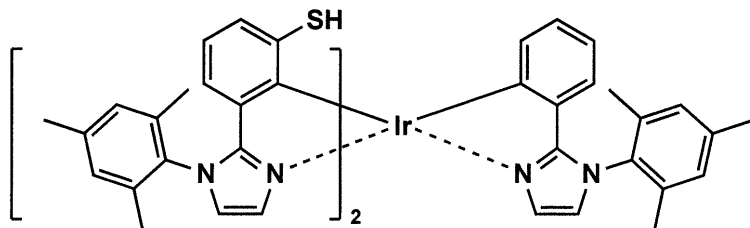
【 0 0 6 3 】

【化 1 5】

D-171

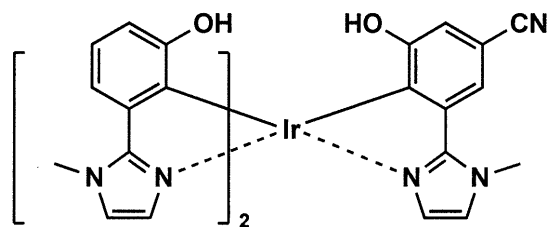


D-172



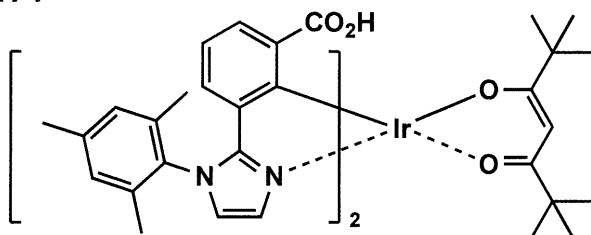
10

D-173



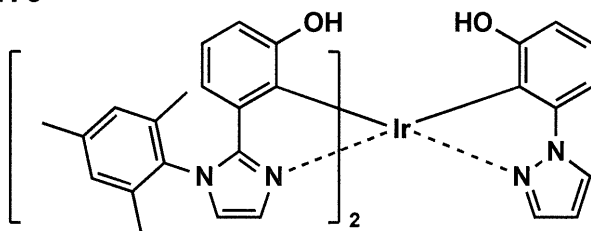
20

D-174

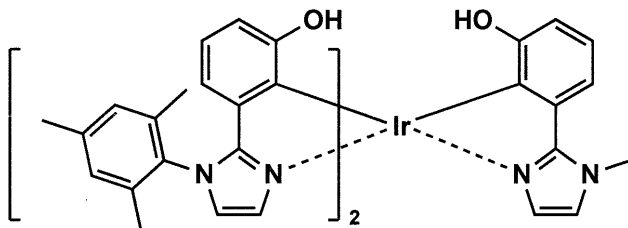


30

D-175



D-176

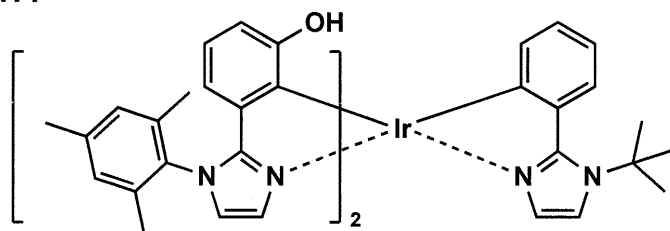


40

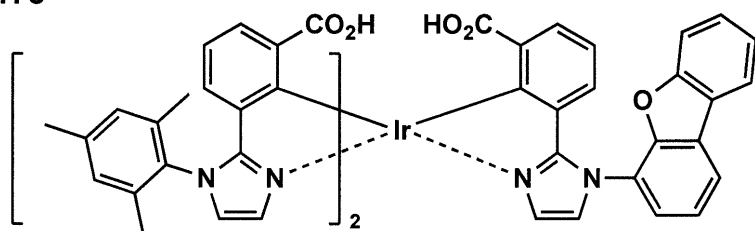
【 0 0 6 4 】

【化 1 6】

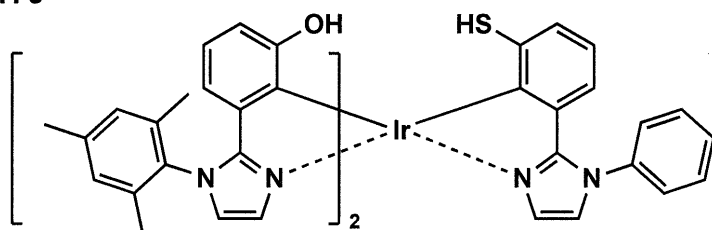
D-177



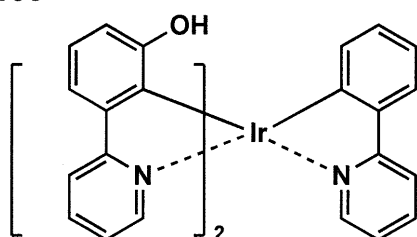
D-178



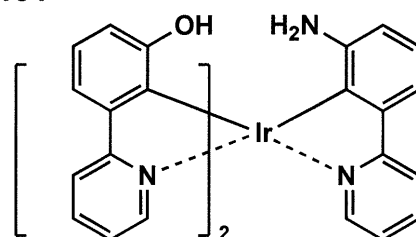
D-179



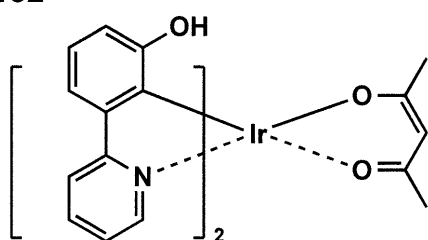
D-180



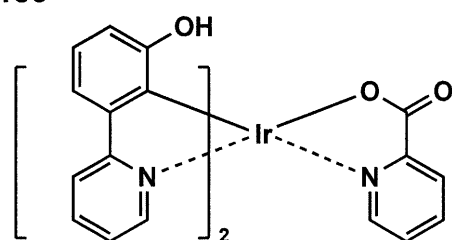
D-181



D-182



D-183



【 0 0 6 5】

10

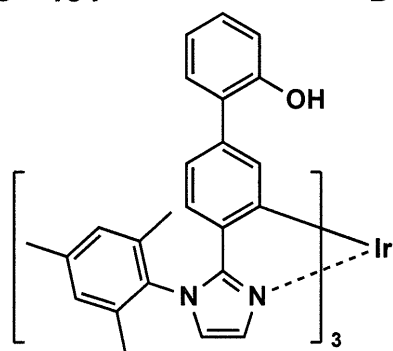
20

30

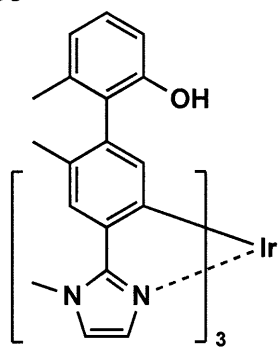
40

【化 1 7】

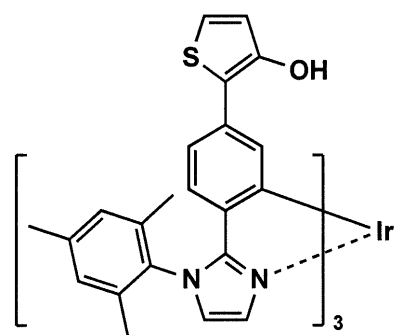
D-184



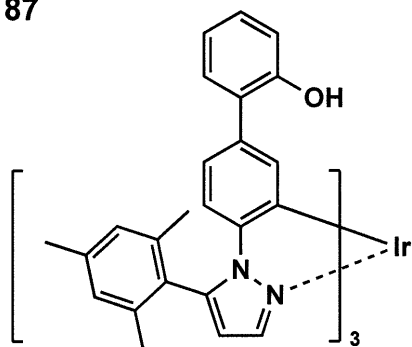
D-185



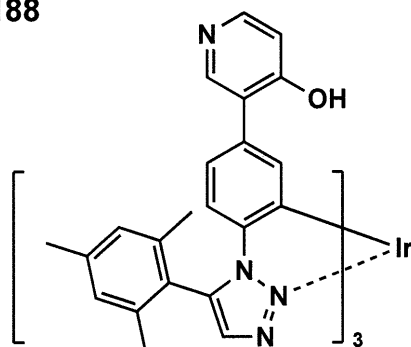
D-186



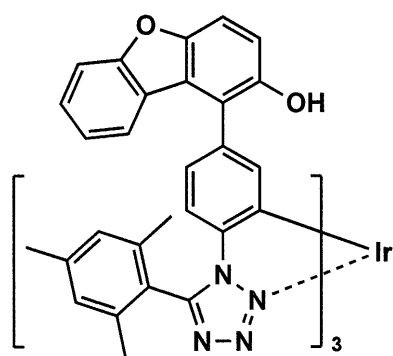
D-187



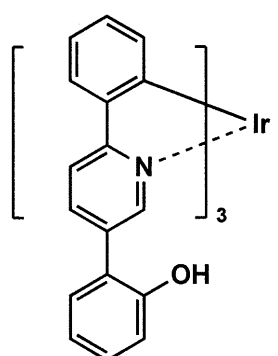
D-188



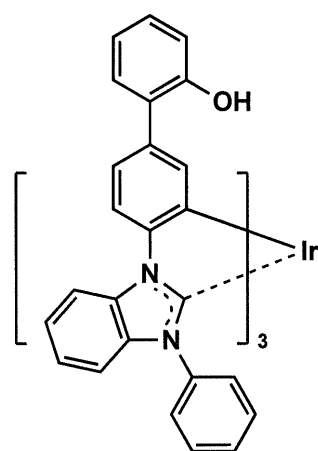
D-189



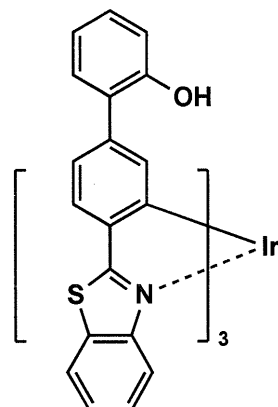
D-190



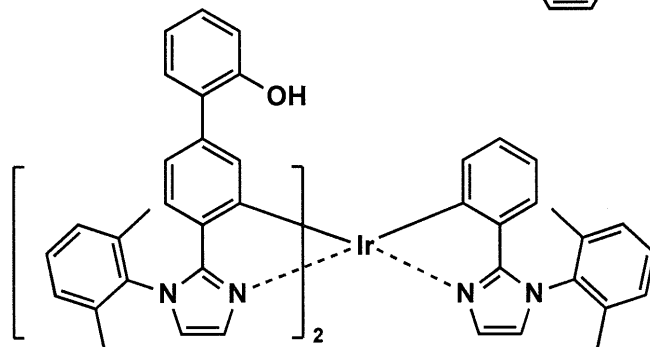
D-191



D-192



D-193



【 0 0 6 6 】

10

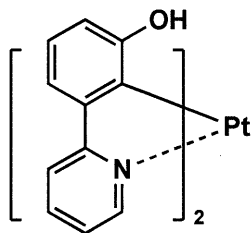
20

30

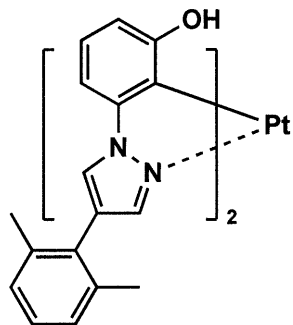
40

【化 18】

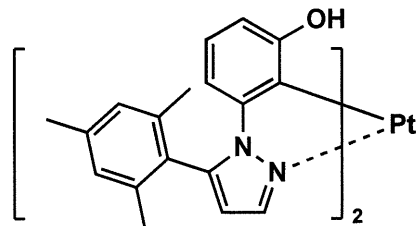
D-194



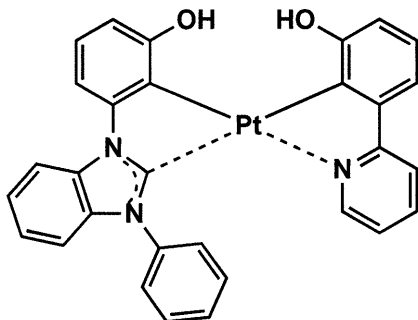
D-195



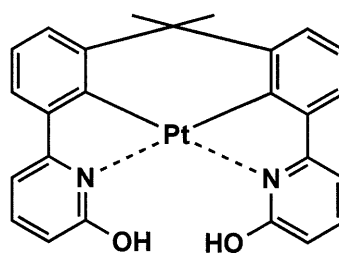
D-196



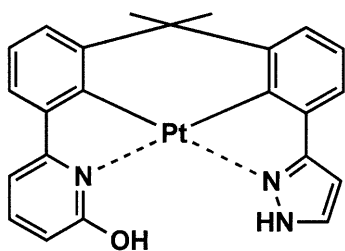
D-197



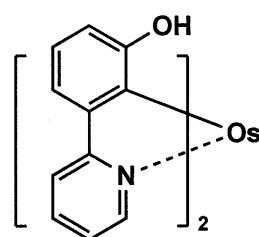
D-198



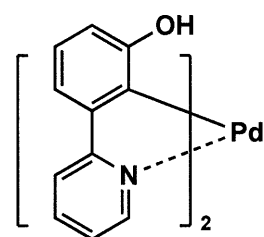
D-199



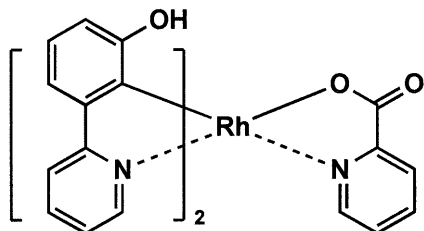
D-200



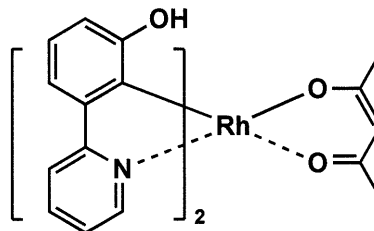
D-201



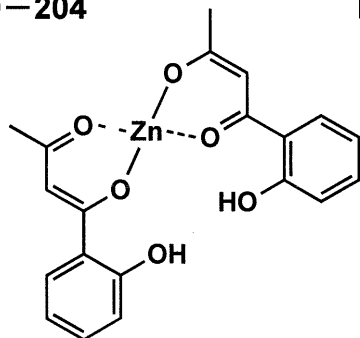
D-202



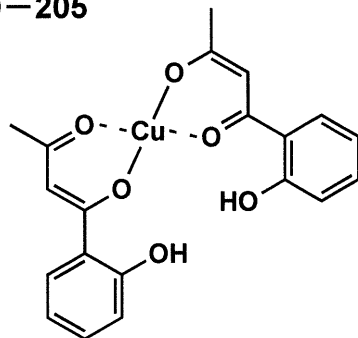
D-203



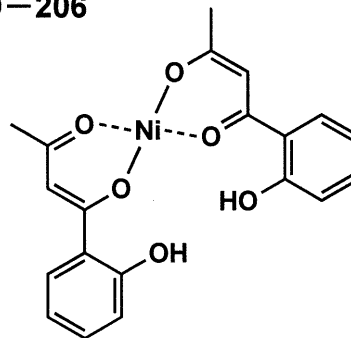
D-204



D-205



D-206



【 0 0 6 7 】

10

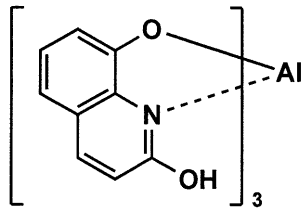
20

30

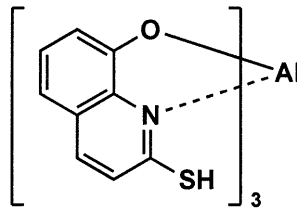
40

【化 19】

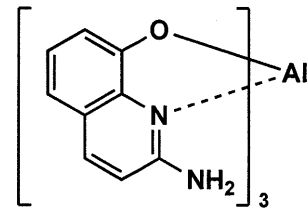
D-207



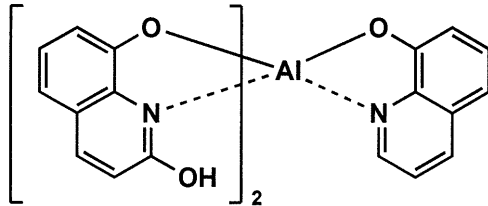
D-208



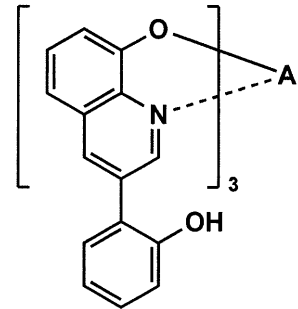
D-209



D-210

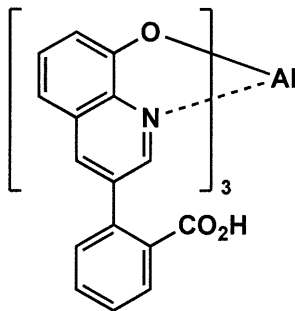


D-211

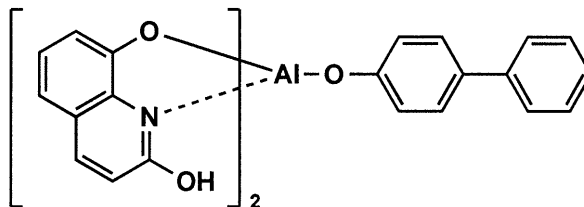


10

D-212



D-213



20

【0068】

《一般式(DP)で表される構造を有する化合物の合成例》

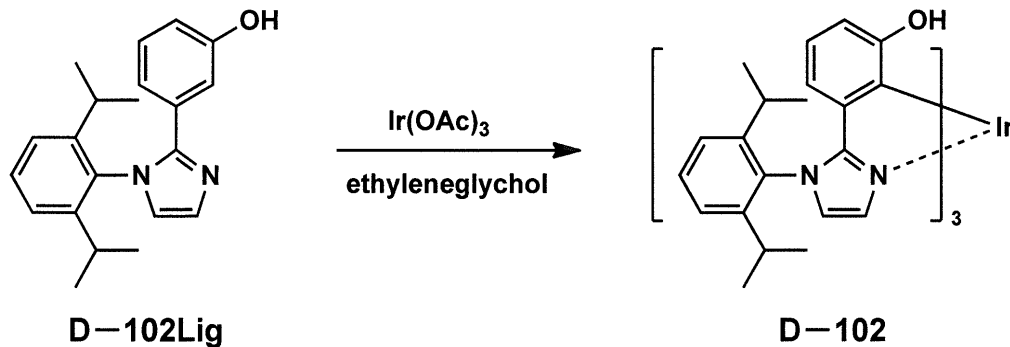
30

本発明の上記一般式(DP)で表される構造を有する化合物の合成例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

以下、本発明の化合物の合成例を説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。具体例の中のD-102の合成方法を例にとって説明する。D-102以外の本発明の化合物も類似の方法で合成した。

【0069】

【化20】



40

(化合物D-102の合成)

【0070】

200 mLナスフラスコにD-102Lig(3.90g)と酢酸イリジウム(0.9

50

0 g) 及びエチレングリコール 100 mL を入れ、窒素気流下、160 で 10 時間加熱撹拌を続けた。反応終了後、室温まで冷却し、析出物を濾別した。濾取した固体をシリカゲルクロマトグラフィーで精製し、黄色の目的物 1.40 g を得た。NMR スペクトルチャート及び熱分析チャートを図 8 及び図 9 に示す。

なお、NMR スペクトルチャートは、FT-NMR Lambda 400 (日本電子株式会社製) 装置を使用し、測定条件は、磁場強度: 400 MHz、溶媒: ジクロロメタン-d₂、測定温度: 25 とした。

また、熱分析チャートは、示差熱重量同時測定装置 SII TG/DTA6200 を使用し、測定条件は、窒素気流化、昇温レート: 10 /min、測定範囲: 30 ~ 500、サンプル質量: 3.23 mg とした。熱分析チャートにおいて、縦軸は、重量減少度を示し、横軸は、温度を示す。

10

【0071】

《一般式 (DP) で表される構造を有する化合物のその他の特性》

上記一般式 (DP) で表される構造を有する化合物は、有機 EL 素子用材料に限らず、抗酸化作用を持ち、種々の有機エレクトロニクス素子材料として用いる有機金属錯体に好適に用いられる。

本発明の有機金属錯体は、抗酸化剤としても働き、その作用の一つとして画像安定化剤として機能する。例えば、画像形成に用いられる色素は一重項酸素によって退色プロセスが進行する。色素分子近傍に金属錯体を配置すると、金属錯体の一重項酸素をクエンチする作用が働き、結果として色素分子の分解を抑制することが可能となる。

20

【0072】

[有機エレクトロルミネッセンス素子]

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、少なくとも 1 対の陽極と陰極の間に発光層を含む一つ又は複数の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層のいずれかが、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有していることを特徴とする。

本発明の実施形態としては、種々の形態を採り得るが、本発明の効果発現の観点から、前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有していることが好ましい。

また、前記発光層が、前記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として、前記一般式 (DP) で表される構造を有するリン光発光性有機金属錯体を含有していることが、当該リン光発光性有機金属錯体の安定性等の観点から好ましい。

30

また、前記発光層に含有されるリン光発光性有機金属錯体として、Ir 錯体が含有されていることが、本発明の効果が一層顕著に発現されることから好ましい。

更に、前記有機層が、ウェットプロセスで形成されたことが好ましい。

【0073】

《有機エレクトロルミネッセンス素子の構成層》

本発明の有機 EL 素子において、陽極と陰極との間に挟持される各種有機層の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。

【0074】

40

(i) 陽極 / 発光層ユニット / 電子輸送層 / 陰極

(ii) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層ユニット / 電子輸送層 / 陰極

(iii) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層ユニット / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極

(iv) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層ユニット / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極バッファ層 / 陰極

(v) 陽極 / 陽極バッファ層 / 正孔輸送層 / 発光層ユニット / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極バッファ層 / 陰極

【0075】

更に、発光層ユニットは複数の発光層の間に非発光性の中間層を有していてもよく、該中間層が電荷発生層であるようなマルチフォトンユニット構成であってもよい。この場合

50

、電荷発生層としては、ITO（インジウム・スズ酸化物）、IZO（インジウム・亜鉛酸化物）、 ZnO_2 、 TiN 、 ZrN 、 HfN 、 TiO_x 、 VO_x 、 CuI 、 InN 、 GaN 、 CuAlO_2 、 CuGaO_2 、 SrCu_2O_2 、 LaB_6 、 RuO_2 等の導電性無機化合物層や、 $\text{Au/Bi}_2\text{O}_3$ 等の二層膜や、 $\text{SnO}_2/\text{Ag/SnO}_2$ 、 ZnO/Ag/ZnO 、 $\text{Bi}_2\text{O}_3/\text{Au/Bi}_2\text{O}_3$ 、 $\text{TiO}_2/\text{TiN/TiO}_2$ 及び $\text{TiO}_2/\text{ZrN/TiO}_2$ 等の多層膜並びに C_{60} 等のフラーレン類、オリゴチオフェン等の導電性有機物層、金属フタロシアニン類、無金属フタロシアニン類、金属ポルフィリン類及び無金属ポルフィリン類等の導電性有機化合物層等が挙げられる。

【0076】

本発明の有機EL素子における発光層としては白色発光層であることが好ましく、これらを用いた照明装置であることが好ましい。

10

【0077】

本発明の有機EL素子を構成する各層について、以下説明する。

【0078】

《発光層》

本発明に係る発光層は、電極又は電子輸送層及び正孔輸送層から注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

【0079】

発光層の層厚の総和は特に制限はないが、膜の均質性や、発光時に不必要な高電圧を印加することを防止し、かつ、駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、好ましくは $2\text{nm} \sim 5\mu\text{m}$ の範囲に調整され、更に好ましくは $2 \sim 200\text{nm}$ の範囲に調整され、特に好ましくは $5 \sim 100\text{nm}$ の範囲に調整される。

20

【0080】

発光層の作製には、後述する発光性ドーパントやホスト化合物を用いて、例えば、真空蒸着法又は湿式法（ウェットプロセスともいい、例えば、スピンコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法及びLB法（ラングミュア・プロジェクト（Langmuir-Blodgett法））等を挙げることができる。）等により成膜して形成することができる。なお、本発明に係る6座配位型オルトメタルイリジウム錯体を発光層の材料として用いる場合、ウェットプロセスにて成膜することが好ましい。

30

【0081】

本発明の有機EL素子の発光層には、発光性ドーパント（リン光ドーパント（リン光発光性ドーパント、リン光発光性ドーパント基ともいう。）や蛍光ドーパント等）化合物と、発光性ホスト化合物とを含有することが好ましい。

【0082】

（1）発光性ドーパント

発光性ドーパント（「発光ドーパント」、単に「ドーパント」ともいう。）としては、蛍光ドーパント（蛍光性化合物ともいう。）、リン光ドーパント（リン光発光体、リン光性化合物、リン光発光性化合物等ともいう。）を用いることができる。

40

本発明においては、リン光ドーパントとして、前述の一般式（DP）で表される構造を有する有機金属錯体を用いることが特徴である。本発明では、特に、リン光ドーパントが、イリジウム錯体であることが好ましい。

なお、発明においては、以下において詳述する種々の発光性ドーパントを併用することもできる。

【0083】

（1.1）リン光ドーパント

本発明に係るリン光ドーパント（「リン光発光性ドーパント」、「リン光発光ドーパント」ともいう。）は、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、具体的には室温（ 25°C ）にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、 25°C において0.0

50

1 以上の化合物であると定義されるが、好ましいリン光量子収率は 0.1 以上である。

【0084】

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

【0085】

リン光ドーパントの発光の原理は、二種類挙げられる。一つは、キャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こって発光性ホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光ドーパントに移動させることでリン光ドーパントからの発光を得るというエネルギー移動型である。もう一つは、リン光ドーパントがキャリアトラップとなり、リン光ドーパント上でキャリアの再結合が起こり、リン光ドーパントからの発光が得られるというキャリアトラップ型である。いずれの場合においても、リン光ドーパントの励起状態のエネルギーは、発光性ホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

10

【0086】

(1.2) 蛍光ドーパント

蛍光ドーパント(「蛍光性化合物」ともいう。)としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフエン系色素又は希土類錯体系蛍光体等や、レーザー色素に代表される蛍光量子収率が高い化合物が挙げられる。

20

【0087】

(1.3) 従来公知のドーパントとの併用

また、本発明に係る発光性ドーパントは、複数種の化合物を併用して用いてもよく、構造の異なるリン光ドーパント同士の組み合わせや、リン光ドーパントと蛍光ドーパントを組み合わせ用いてもよい。

【0088】

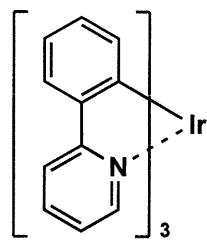
ここで、発光性ドーパントとして、本発明に係る一般式(DP)で表される構造を有する化合物(有機金属錯体)と併用して用いてもよい従来公知の発光性ドーパントの具体例としてD-1~D-47を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

30

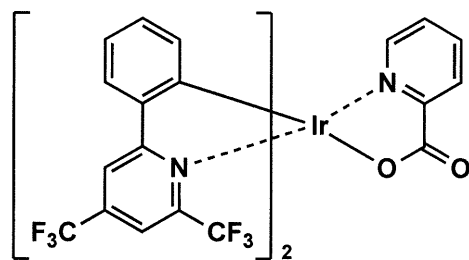
【0089】

【化 2 1】

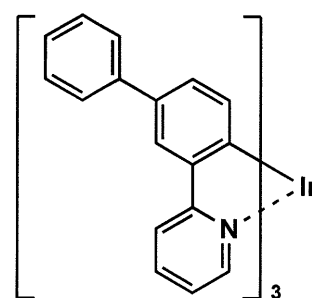
D-1



D-2

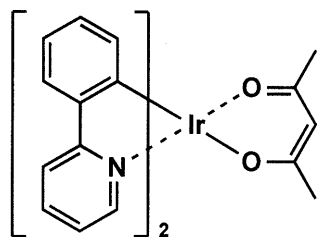


D-3

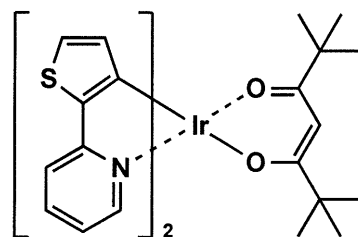


10

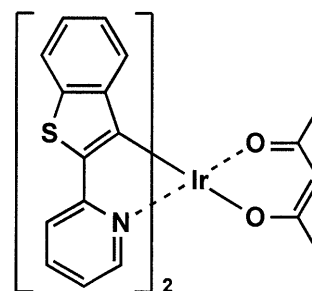
D-4



D-5

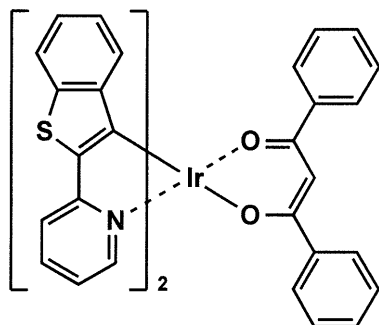


D-6

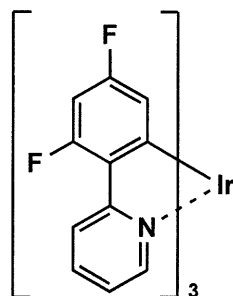


20

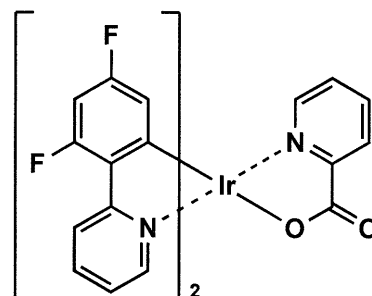
D-7



D-8

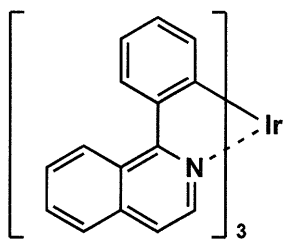


D-9

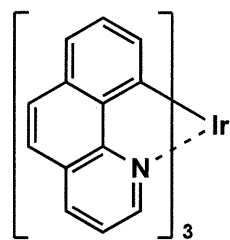


30

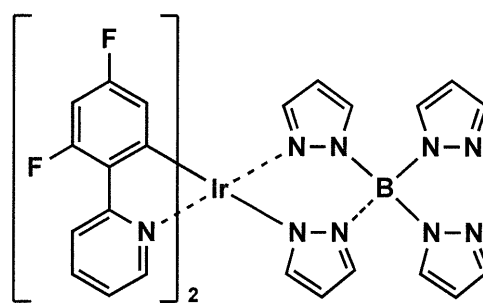
D-10



D-11



D-12

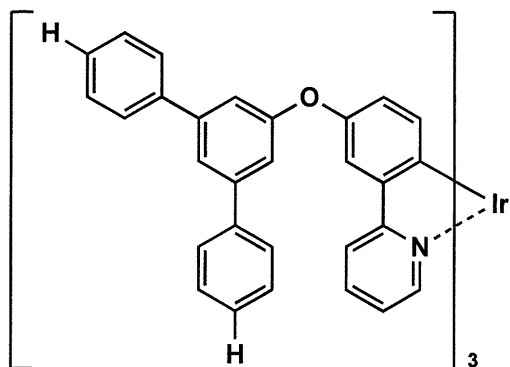


40

【 0 0 9 0 】

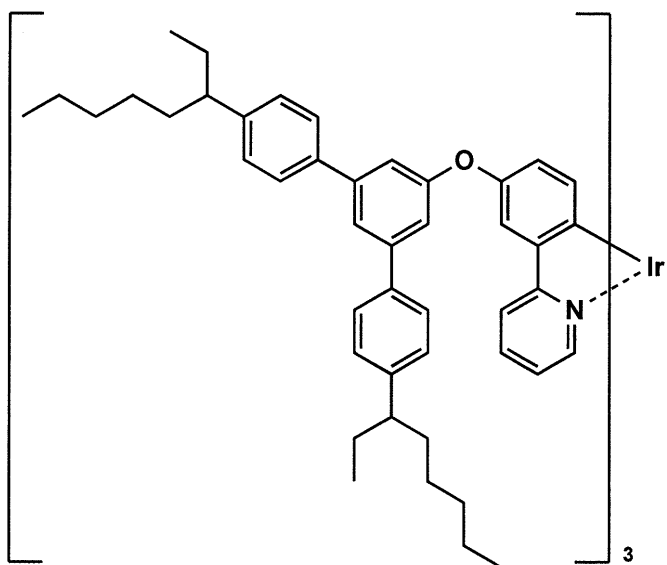
【化 2 2】

D-13



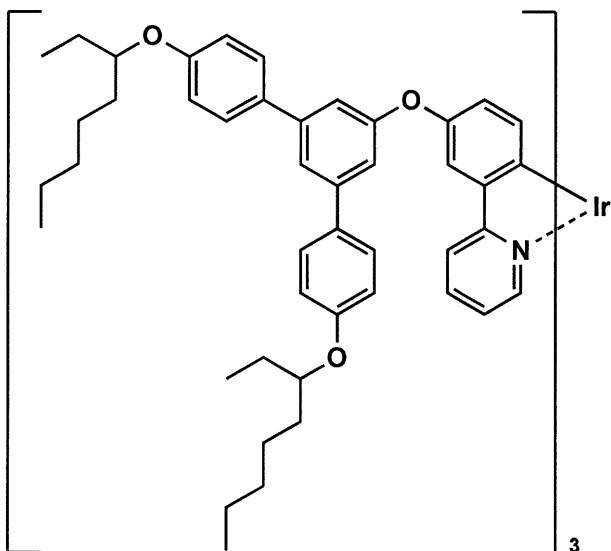
10

D-14



20

D-15



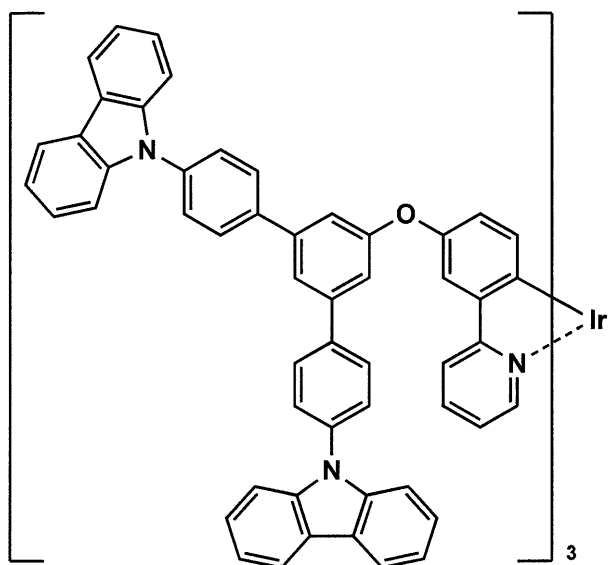
30

40

【 0 0 9 1 】

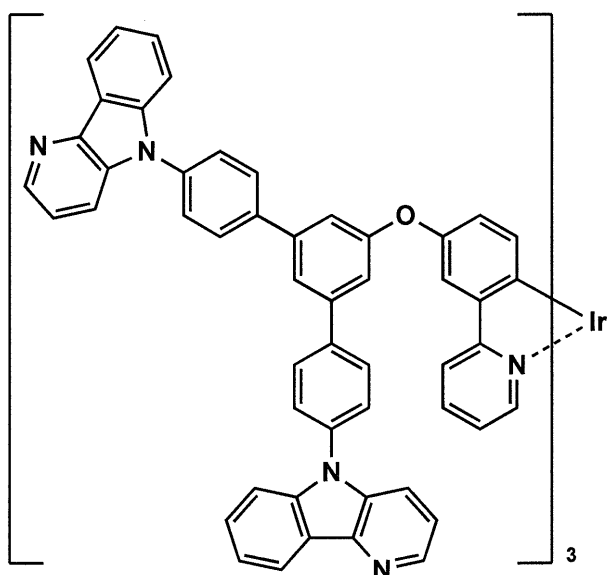
【化 2 3】

D-16



10

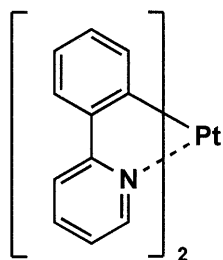
D-17



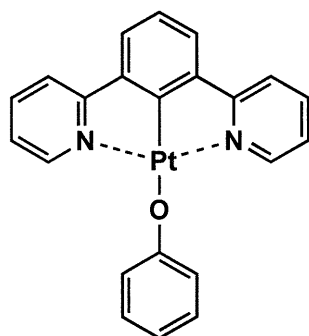
20

30

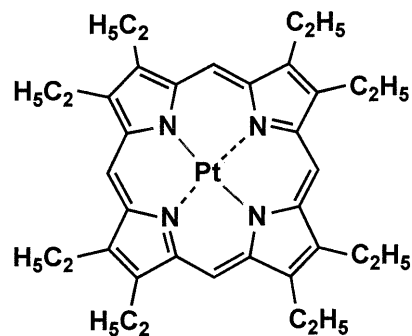
D-18



D-19



D-20

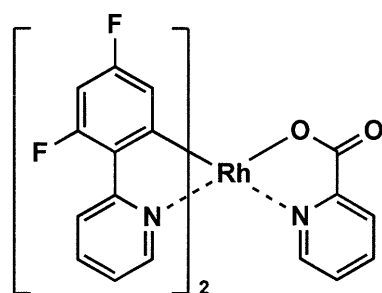


40

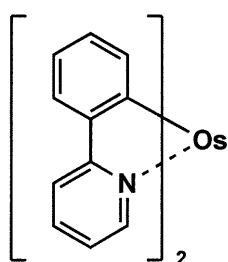
【 0 0 9 2 】

【化 2 4】

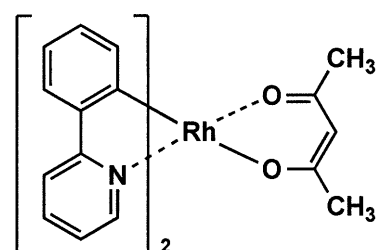
D-21



D-22

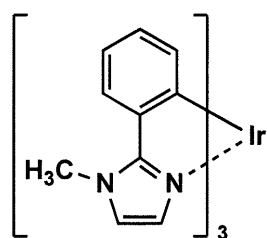


D-23

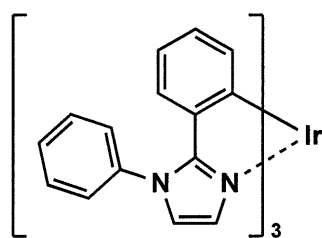


10

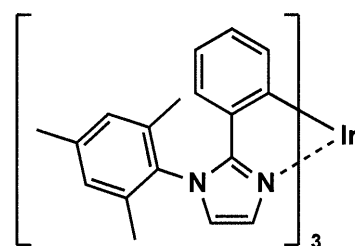
D-24



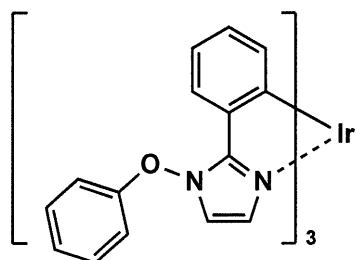
D-25



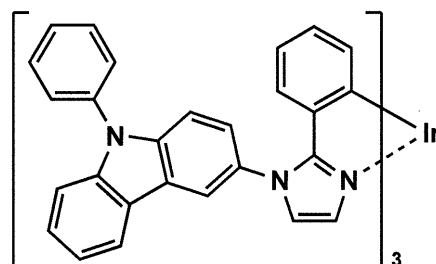
D-26



D-27

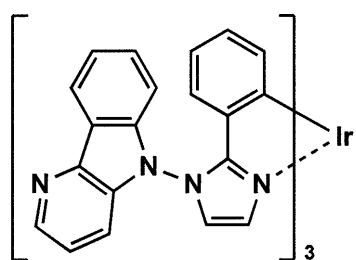


D-28

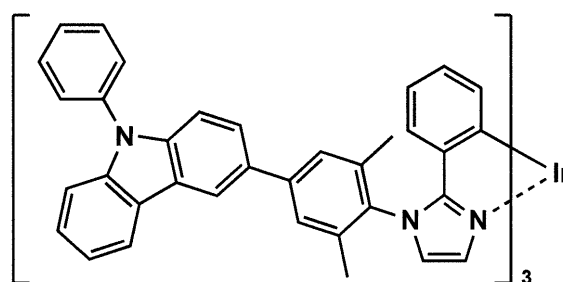


20

D-29

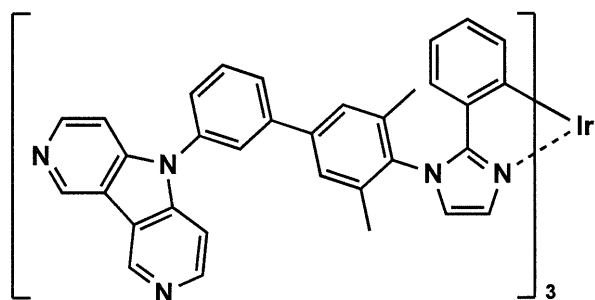


D-30



30

D-31

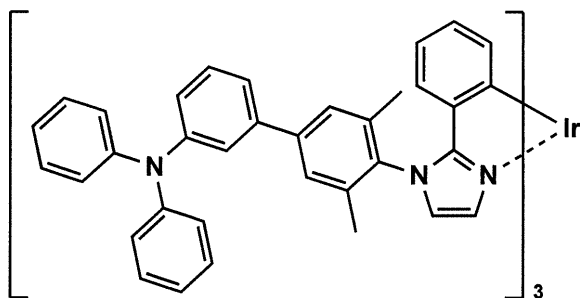


40

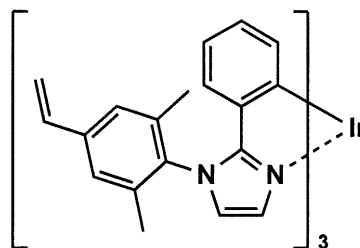
【 0 0 9 3】

【化 25】

D-32

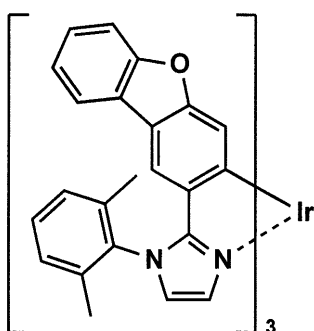


D-33

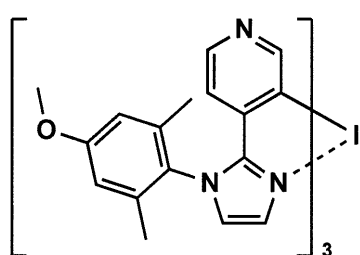


10

D-34

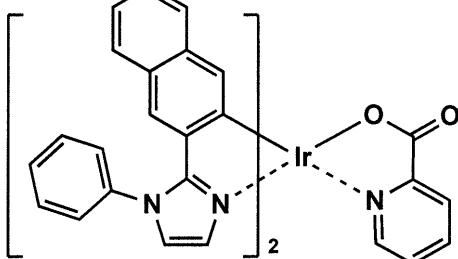


D-35

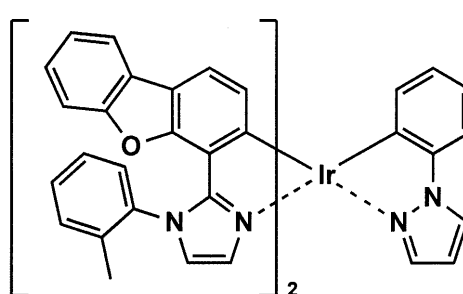


20

D-36

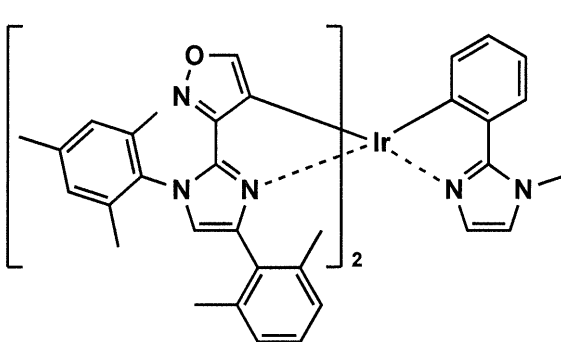


D-37

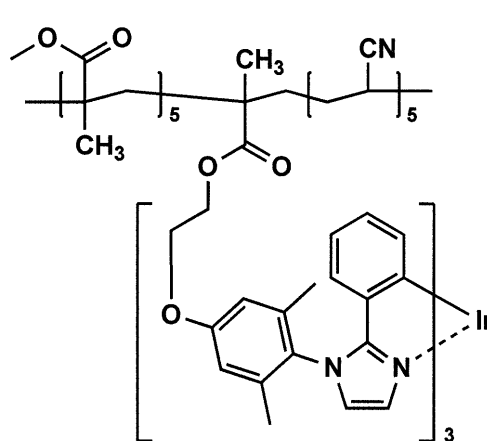


30

D-38



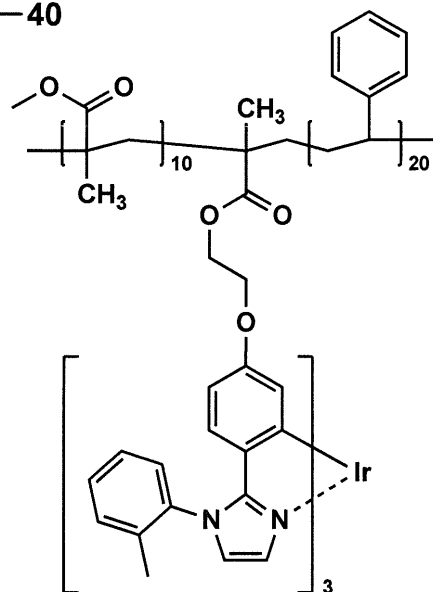
D-39



40

【0094】

D-40



10

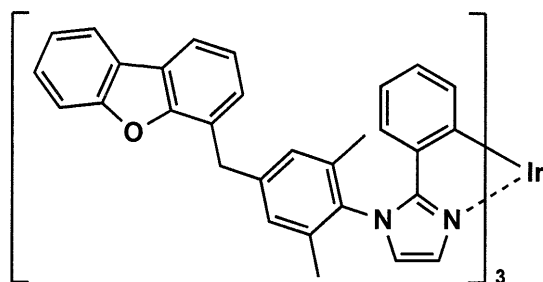
20

30

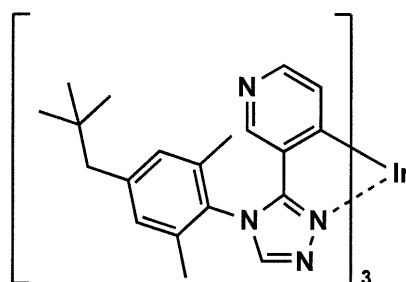
【 0 0 9 5 】

【化 27】

D-44

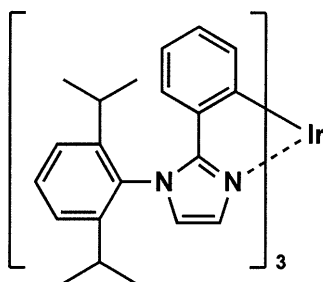


D-45

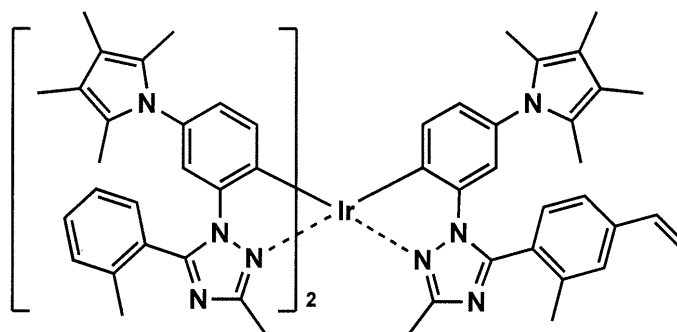


10

D-46



D-47



20

【0096】

(2) 発光性ホスト化合物

本発明において発光性ホスト化合物（「発光性ホスト」、「発光ホスト」、「ホスト化合物」ともいう。）は、発光層に含有される化合物の中で、その層中での質量比が20%以上であり、かつ、室温（25℃）においてリン光発光のリン光量子収率が、0.1未満の化合物と定義される。好ましくはリン光量子収率が0.01未満である。また、発光層に含有される化合物の中で、その層中での質量比が20%以上であることが好ましい。

30

【0097】

本発明に用いることができる発光性ホストとしては、特に制限はなく、従来有機EL素子で用いられる化合物を用いることができる。代表的にはカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体、芳香族誘導体、含窒素複素環化合物、チオフェン誘導体、フラン誘導体、オリゴアリーレン化合物等の基本骨格を有するもの、カルボリン誘導体及びジアザカルバゾール誘導体（ここで、ジアザカルバゾール誘導体とは、カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の少なくとも一つの炭素原子が窒素原子で置換されているものを表す。）等が挙げられる。

【0098】

本発明に用いることができる公知の発光性ホスト化合物としては正孔輸送能又は電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_g（ガラス転移温度）である化合物が好ましい。

40

【0099】

また、本発明においては、従来公知の発光性ホスト化合物を単独で用いてもよく、複数種併用して用いてもよい。発光性ホスト化合物を複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。また、前記リン光ドーパントとして用いられる本発明の有機金属錯体及び/又は従来公知の化合物を複数種用いることで、異なる発光色を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。

【0100】

また、本発明に用いられる発光性ホスト化合物としては、低分子化合物でも、繰り返し

50

単位をもつ高分子化合物でもよく、ビニル基やエポキシ基のような重合性基を有する低分子化合物（重合性発光ホスト）でもよく、このような化合物を一種又は複数種用いても良い。

【0101】

公知の発光性ホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載の化合物が挙げられる。例えば、特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同2002-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-302516号公報、同2002-305083号公報、同2002-305084号公報及び同2002-308837号公報等に記載されている化合物が挙げられる。

10

【0102】

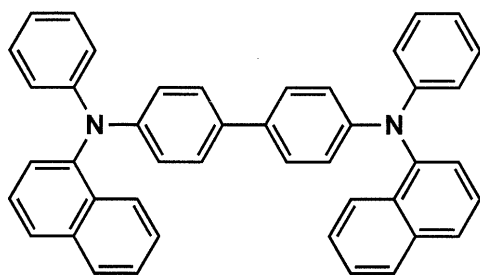
以下、本発明の有機EL素子の発光層の発光性ホスト化合物として用いられる具体例（OC-1～OC-32）を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

20

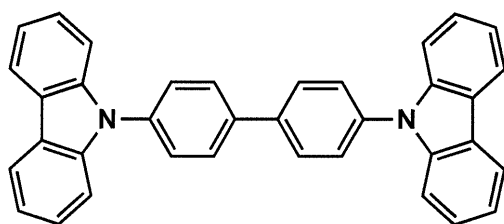
【0103】

【化 28】

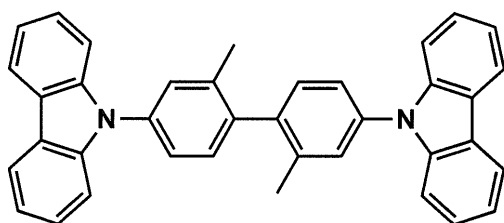
OC-1



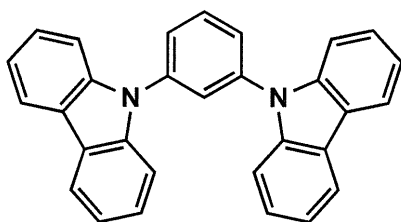
OC-3



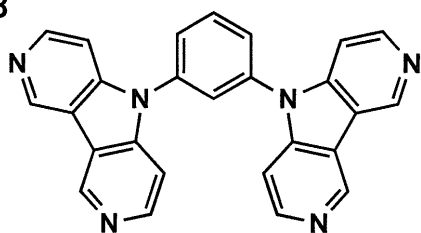
OC-4



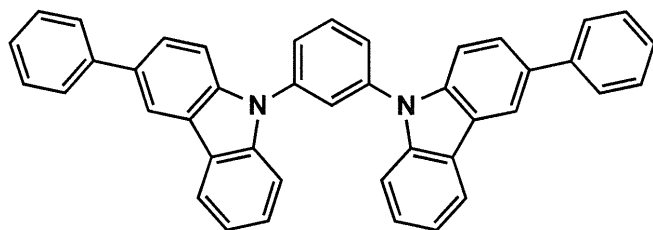
OC-6



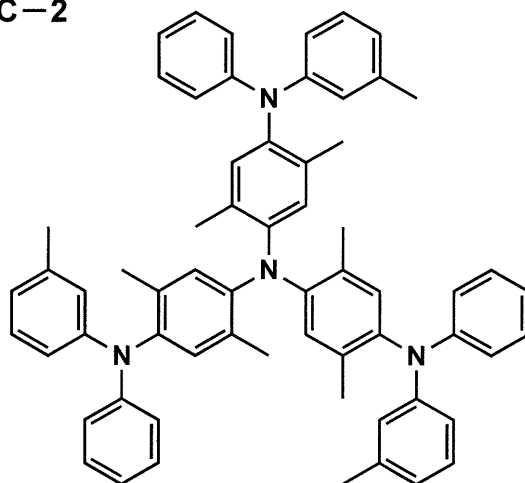
OC-8



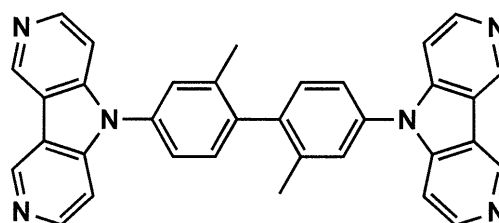
OC-10



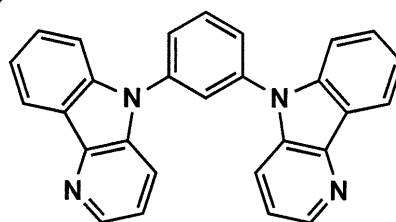
OC-2



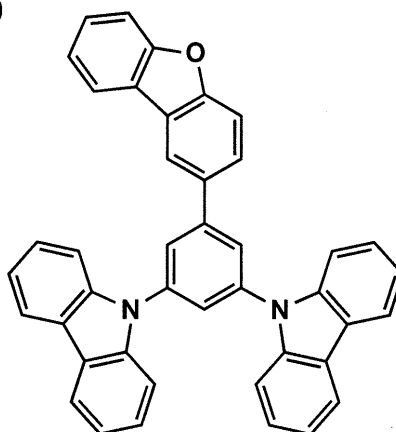
OC-5



OC-7



OC-9



10

20

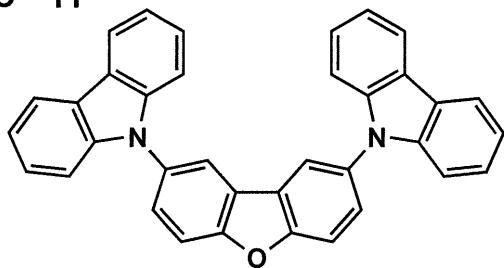
30

40

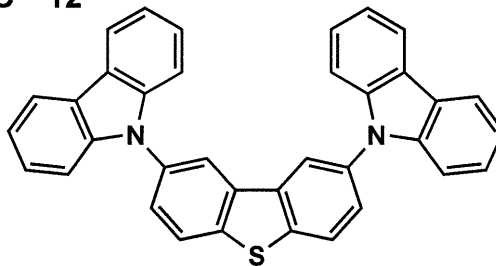
【 0 1 0 4 】

【化 2 9】

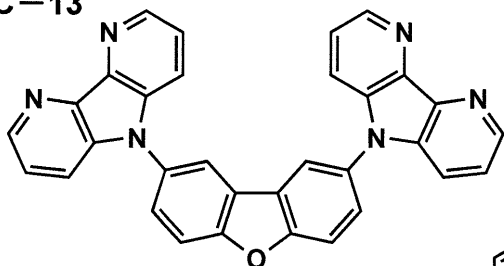
OC-11



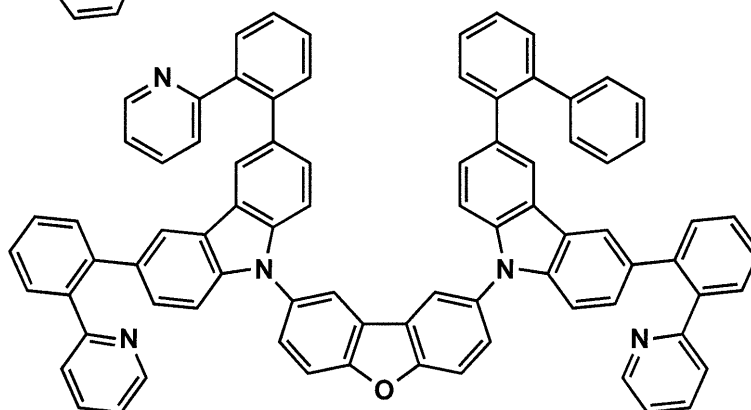
OC-12



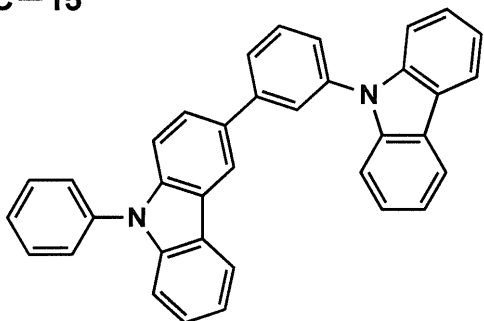
OC-13



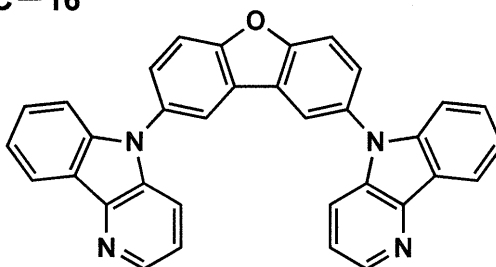
OC-14



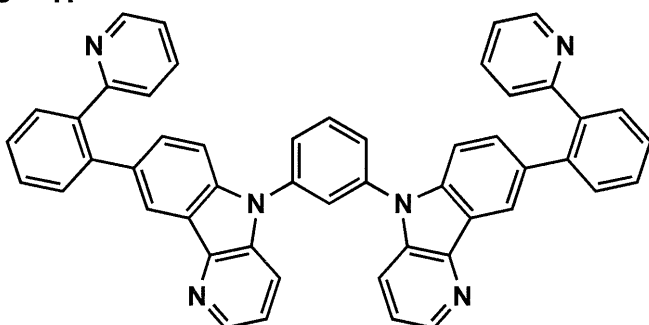
OC-15



OC-16



OC-17



【 0 1 0 5】

10

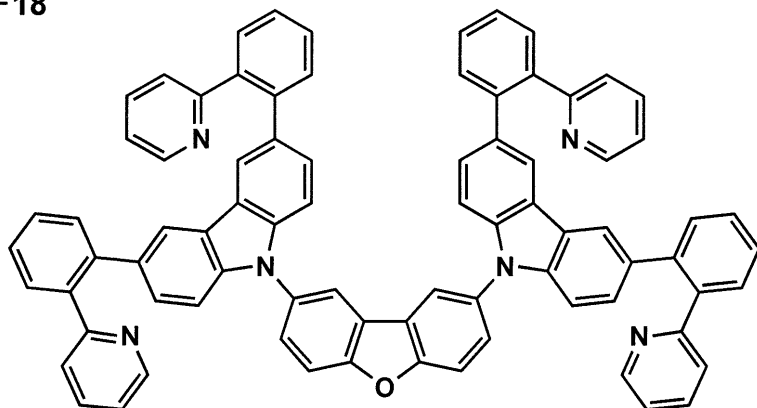
20

30

40

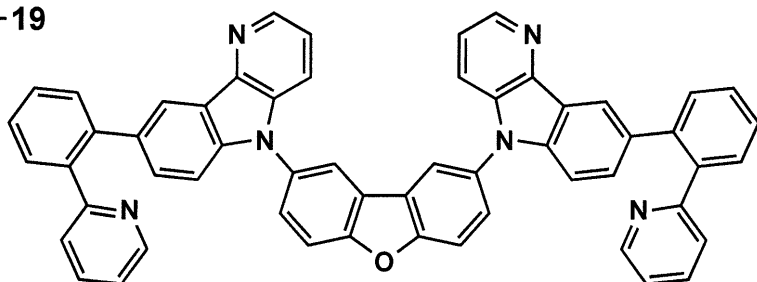
【化 3 0】

OC-18



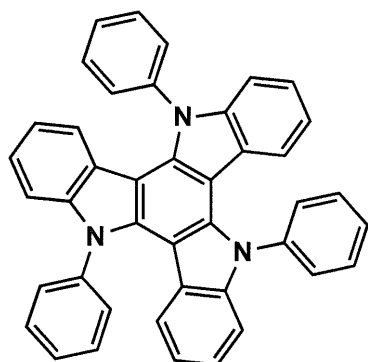
10

OC-19

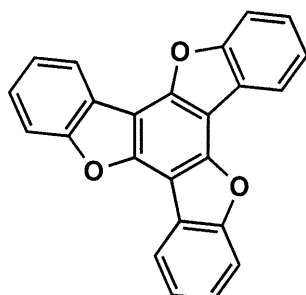


20

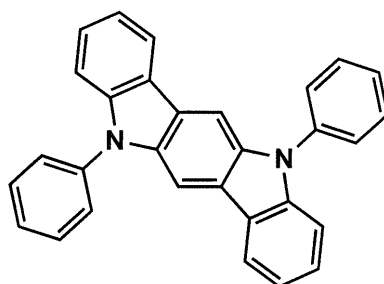
OC-20



OC-21

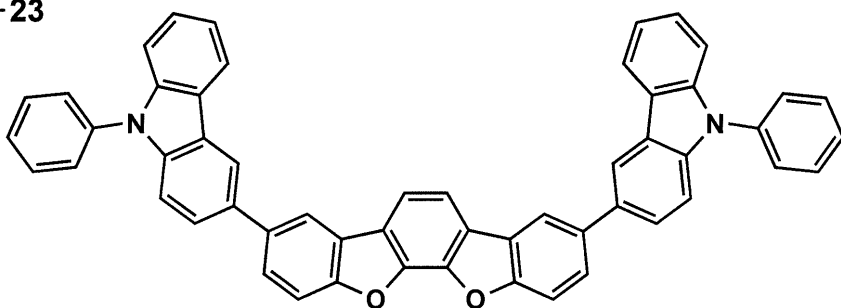


OC-22



30

OC-23

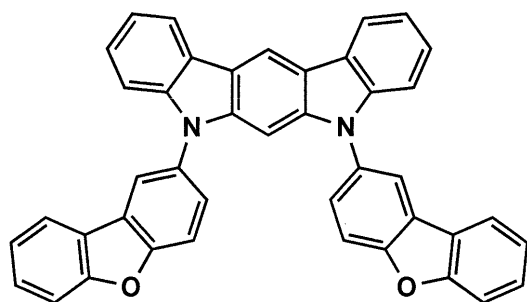


40

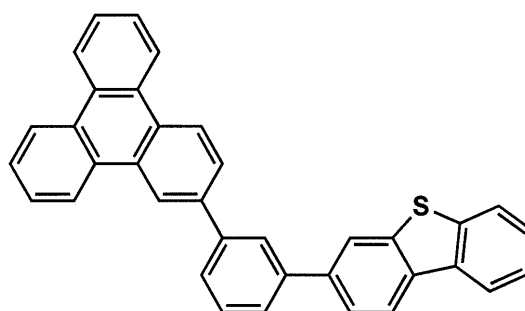
【 0 1 0 6】

【化 3 1】

OC-24

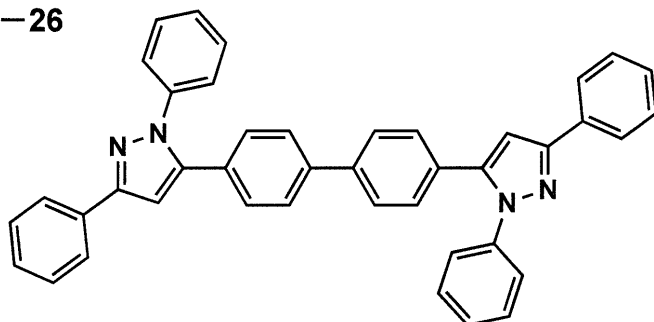


OC-25



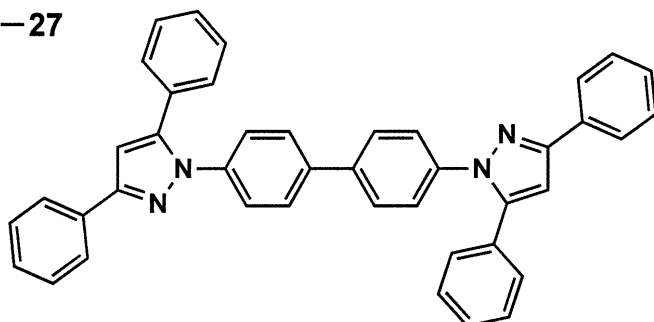
10

OC-26



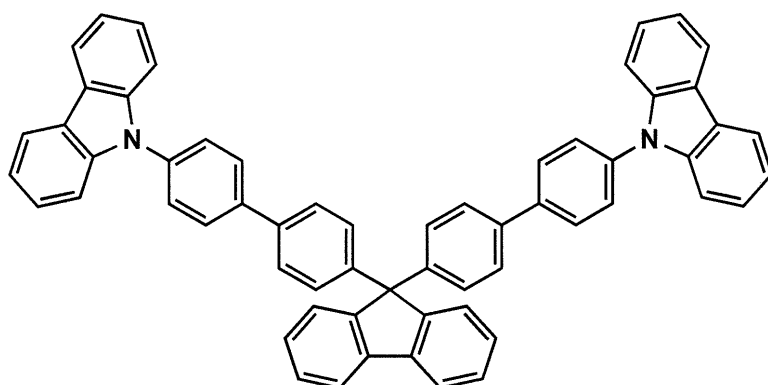
20

OC-27



30

OC-28

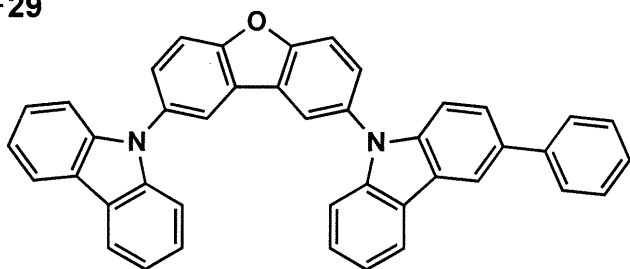


40

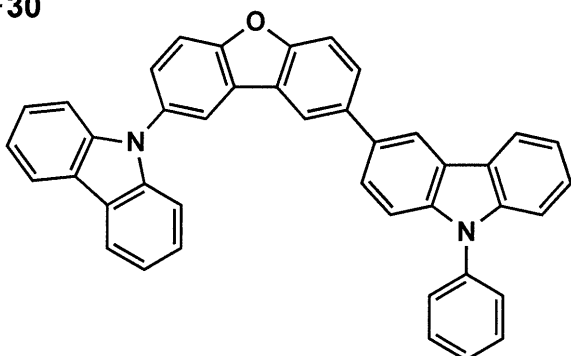
【 0 1 0 7 】

【化 3 2】

OC-29

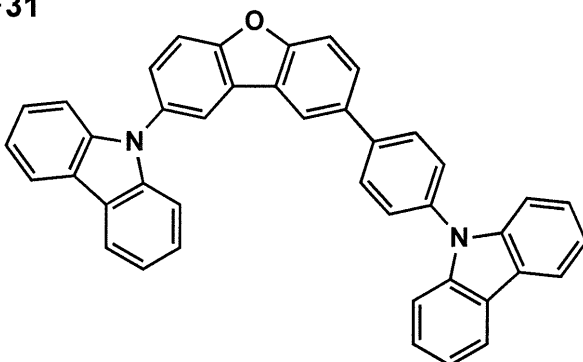


OC-30



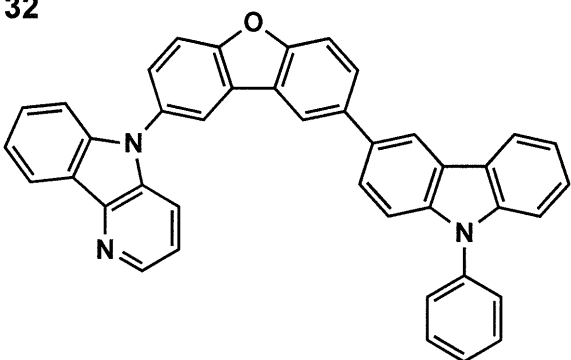
10

OC-31



20

OC-32



30

【 0 1 0 8 】

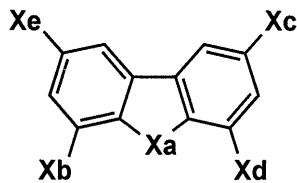
40

更に、本発明の有機EL素子の発光層の発光性ホスト化合物として特に好ましいものは、下記一般式(A)又は一般式(B)で表される化合物である。

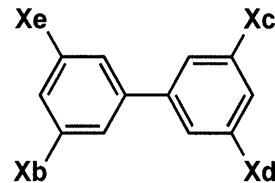
【 0 1 0 9 】

【化 3 3】

一般式(A)



一般式(B)



【0 1 1 0】

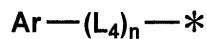
一般式(A)及び(B)中、Xaは、酸素原子又は硫黄原子を表す。Xb、Xc、Xd及びXeは、各々水素原子、置換基又は下記一般式(C)で表される基を表す。Xb、Xc、Xd及びXeのうち少なくとも一つは下記一般式(C)で表される基を表し、下記一般式(C)で表される基のうち少なくとも一つはArがカルbazolリル基を表す。

10

【0 1 1 1】

【化 3 4】

一般式(C)



【0 1 1 2】

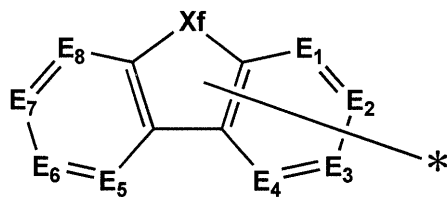
一般式(C)中、L₄は芳香族炭化水素環又は芳香族複素環から導出される2価の連結基を表す。nは0~3の整数を表し、nが2以上の場合、複数のL₄は同じでも異なってもよい。*は一般式(A)又は(B)との連結部位を表す。一般式(A)で表される化合物においては、好ましくは、Xb、Xc、Xd及びXeのうち少なくとも二つが一般式(C)で表され、より好ましくはXcが一般式(C)で表され、且つ、一般式(C)のArが下記一般式(D)で表されるカルbazolリル基を表す。

20

【0 1 1 3】

【化 3 5】

一般式(D)



30

【0 1 1 4】

一般式(D)中、XfはN(R'')、酸素原子又は硫黄原子を表し、E₁~E₈はC(R''₁)又はNを表し、R''及びR''₁は水素原子、置換基又は一般式(C)におけるL₄との連結部位を表す。*は一般式(C)におけるL₄との連結部位を表す。

40

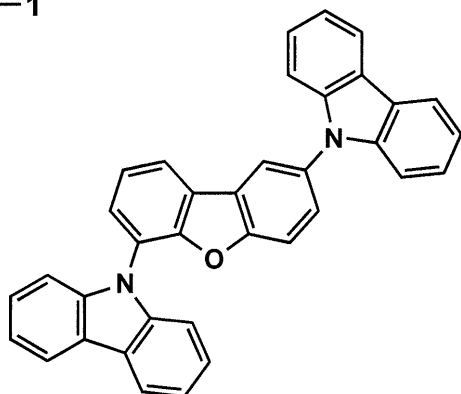
【0 1 1 5】

以下に、本発明の有機EL素子の発光層のホスト化合物(発光ホストともいう。)として好ましく用いられる一般式(A)で表される化合物の具体例として、H-1~H-56を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

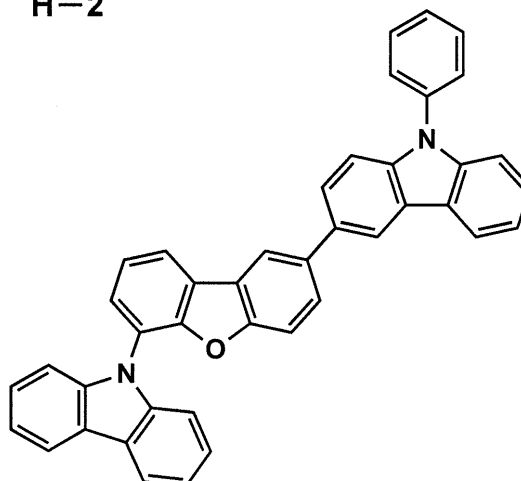
【0 1 1 6】

【化 3 6】

H-1

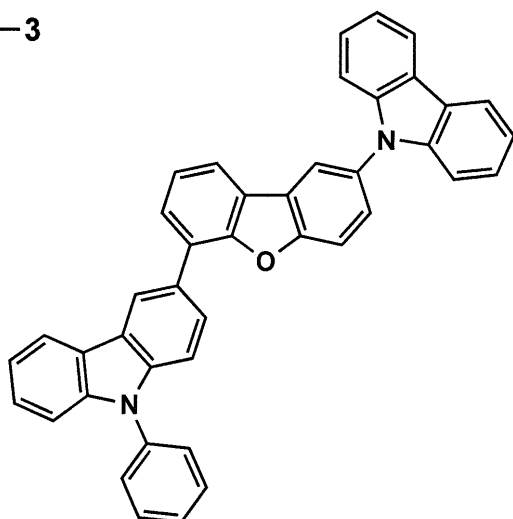


H-2

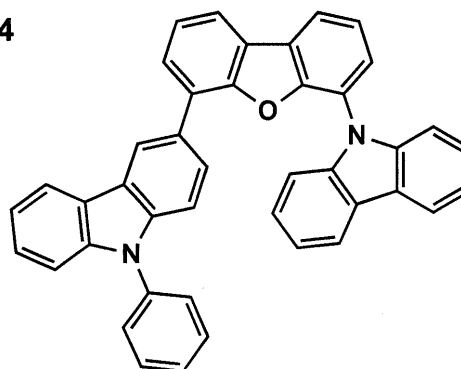


10

H-3

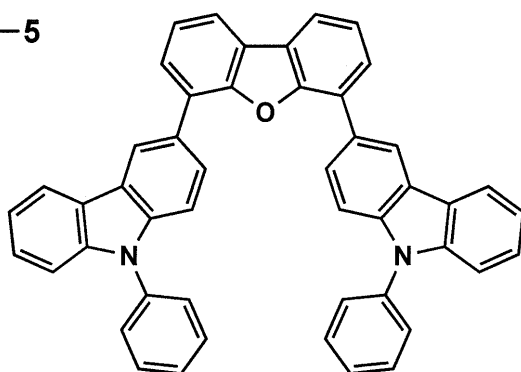


H-4

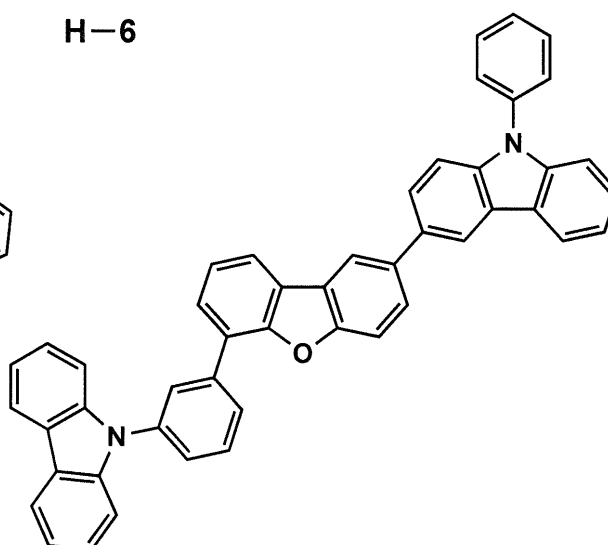


20

H-5



H-6

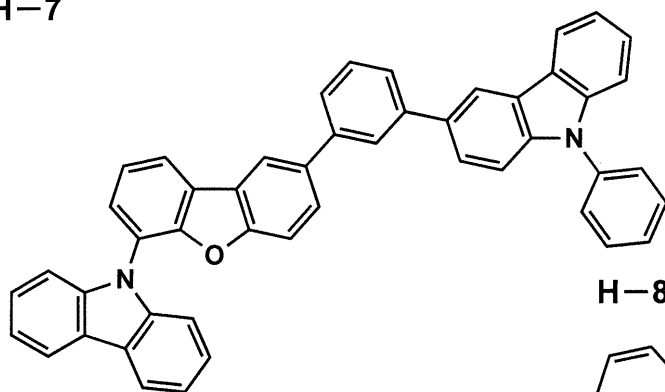


40

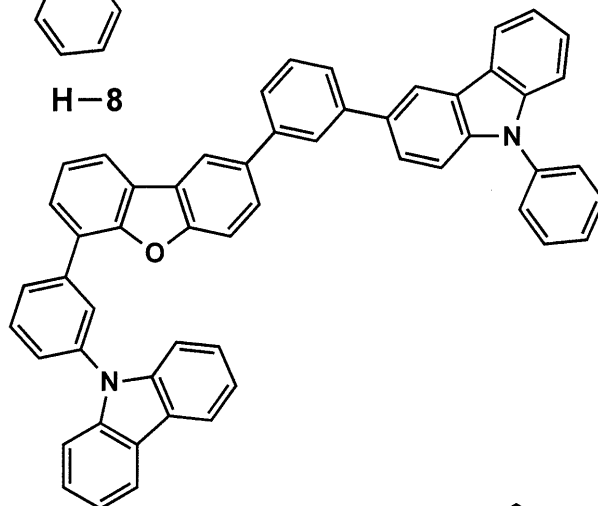
【 0 1 1 7 】

【化 3 7】

H-7

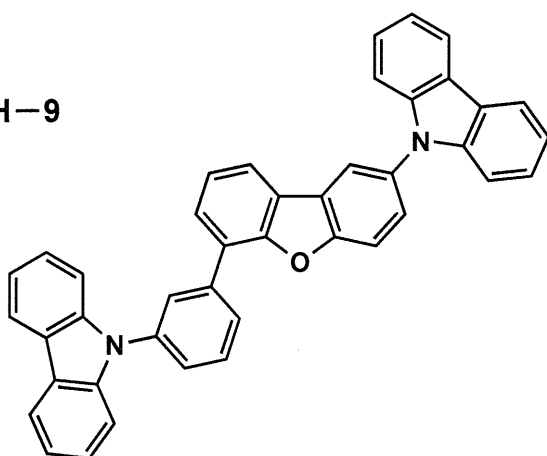


H-8



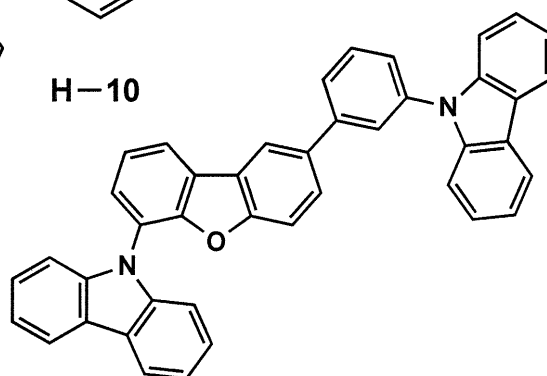
10

H-9



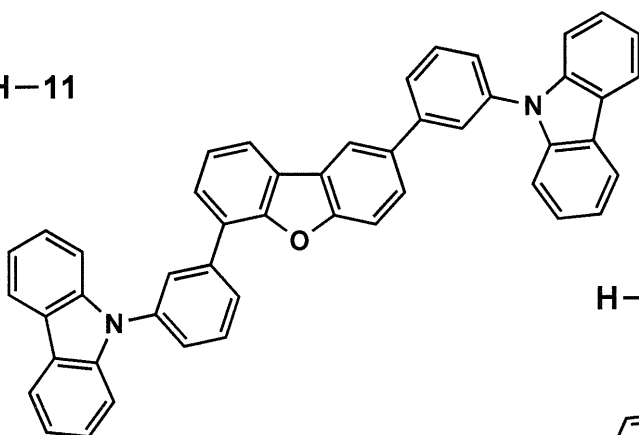
20

H-10

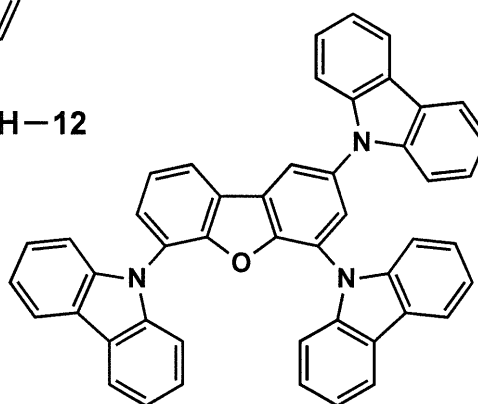


30

H-11



H-12

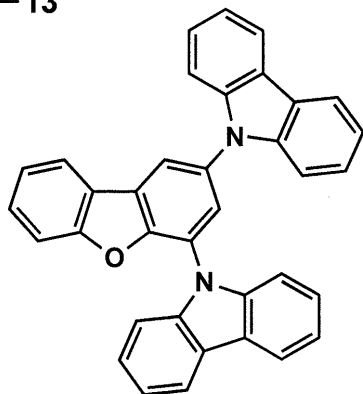


40

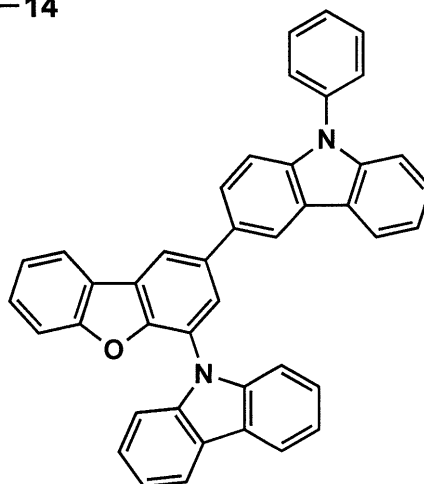
【 0 1 1 8 】

【化 3 8】

H-13

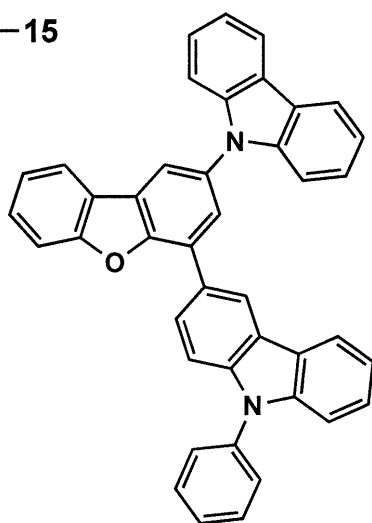


H-14

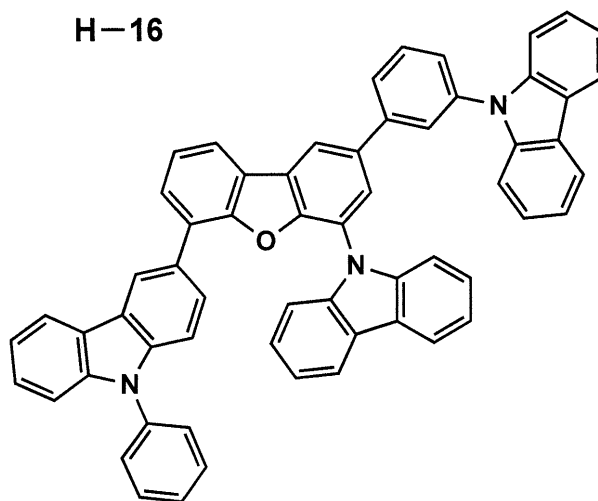


10

H-15

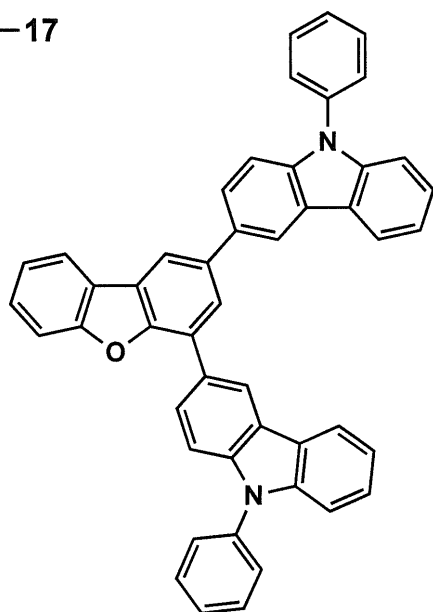


H-16

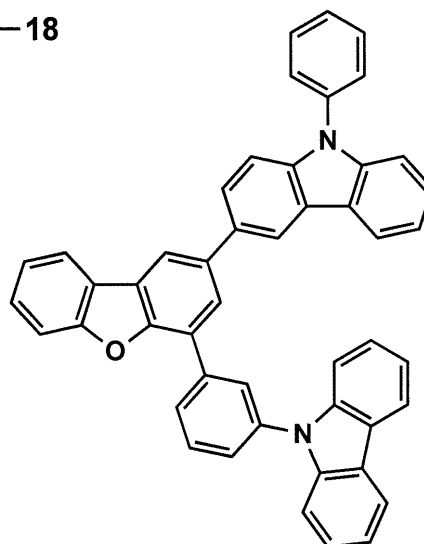


20

H-17



H-18



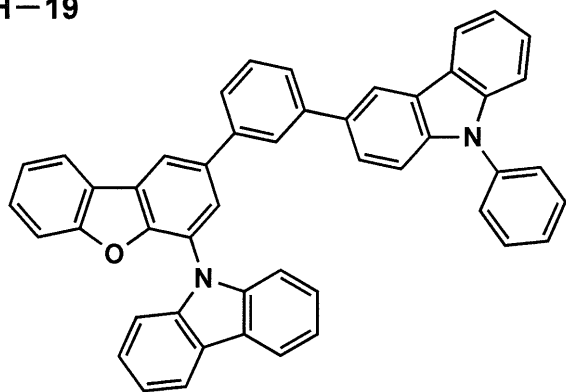
30

40

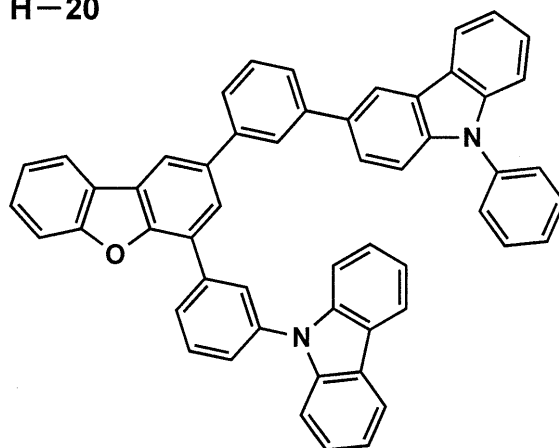
【 0 1 1 9】

【化 3 9】

H-19

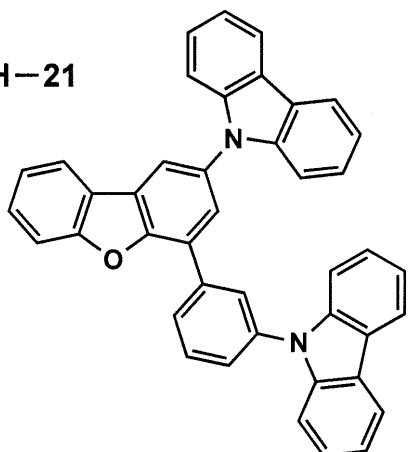


H-20

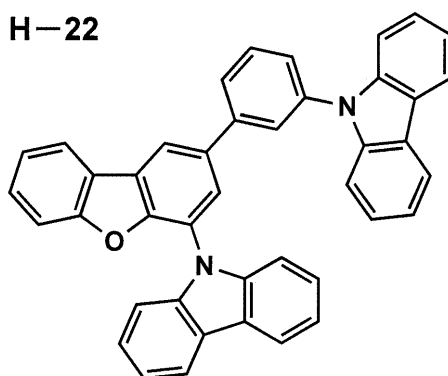


10

H-21

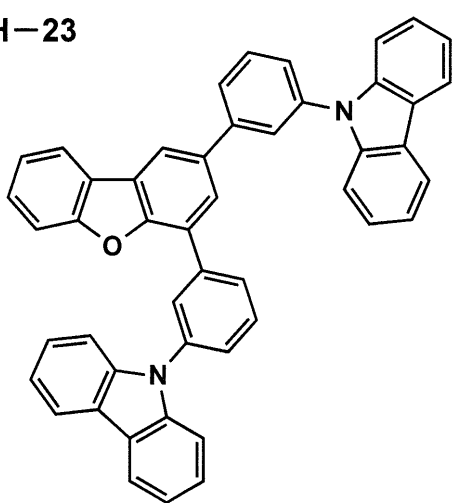


H-22

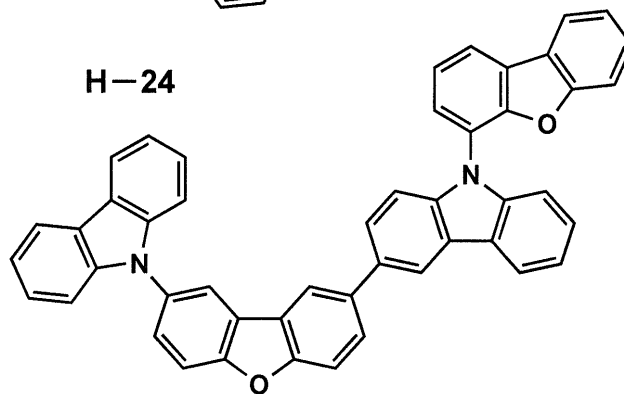


20

H-23

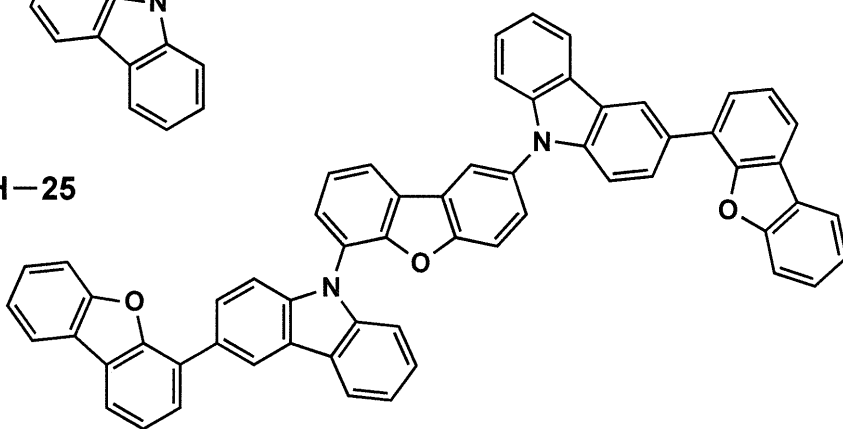


H-24



30

H-25

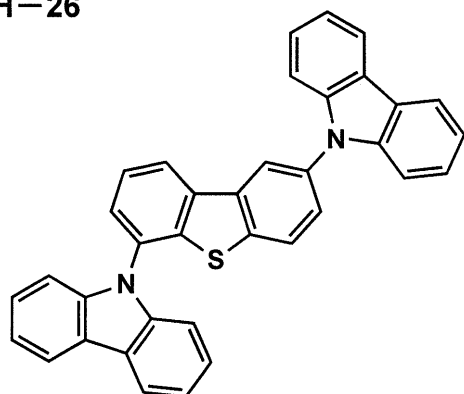


40

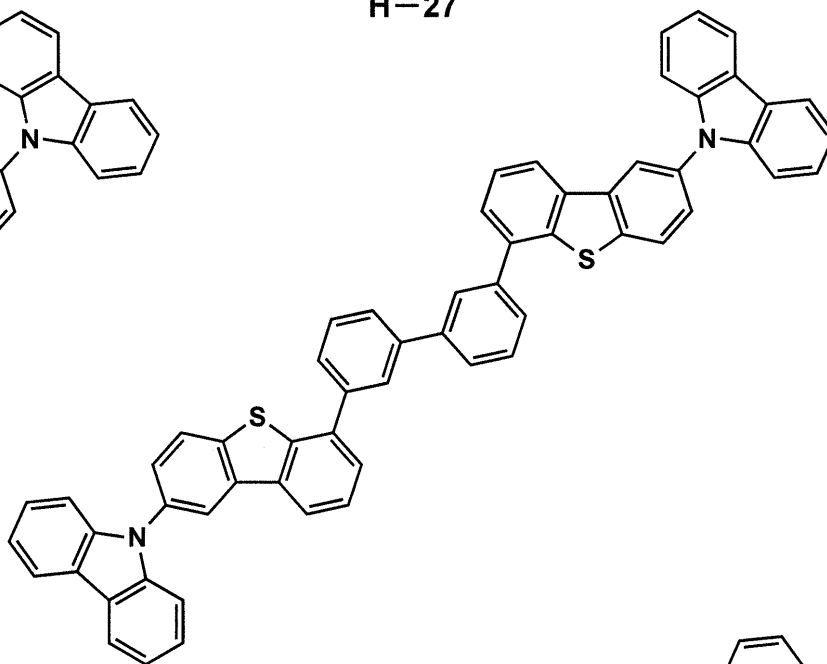
【 0 1 2 0 】

【化 4 0】

H-26

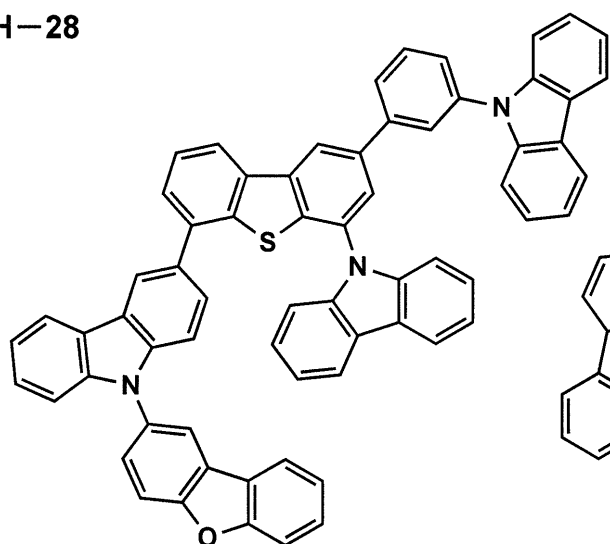


H-27

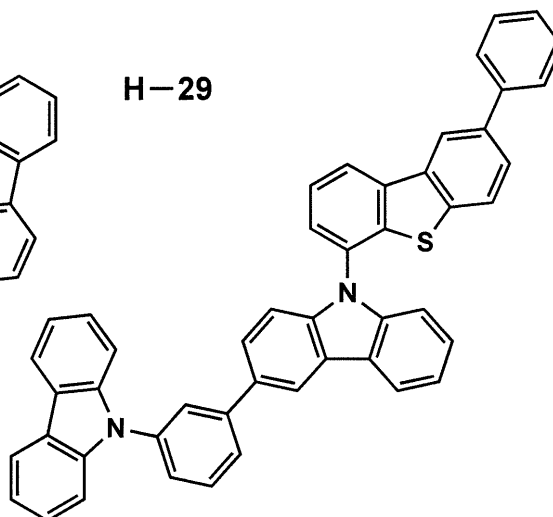


10

H-28



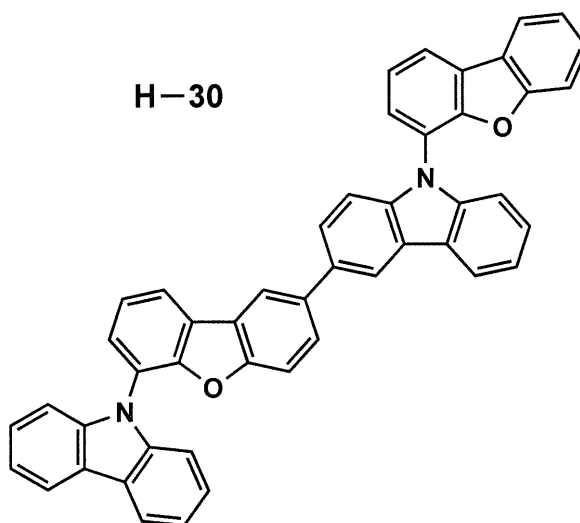
H-29



20

30

H-30

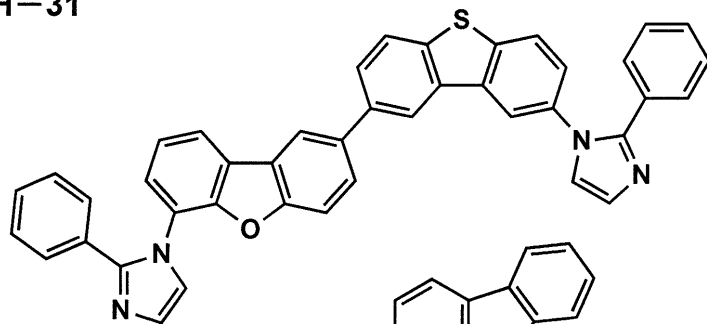


40

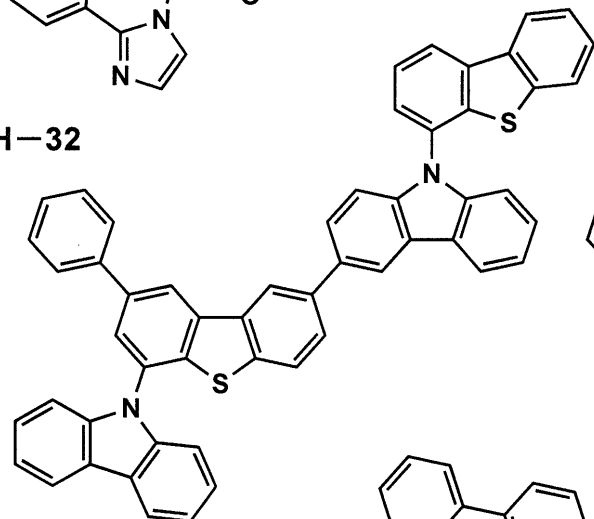
【 0 1 2 1】

【化 4 1】

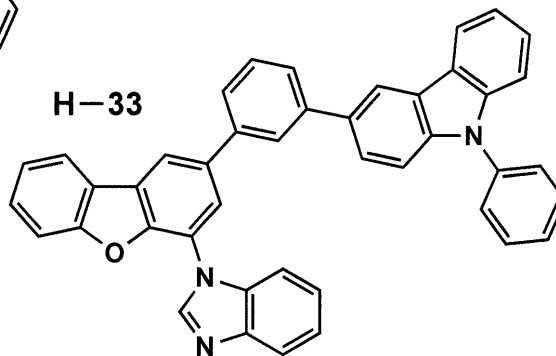
H-31



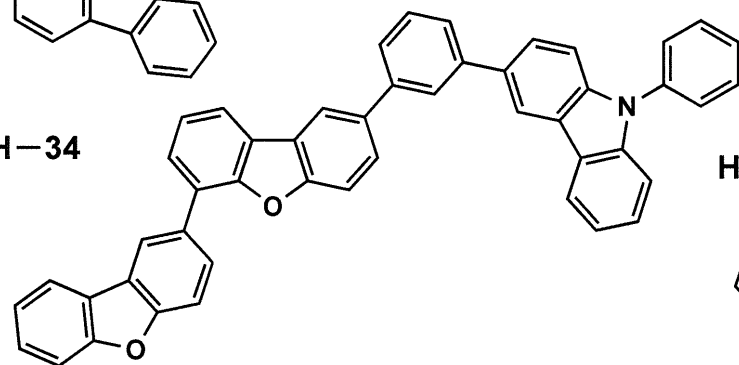
H-32



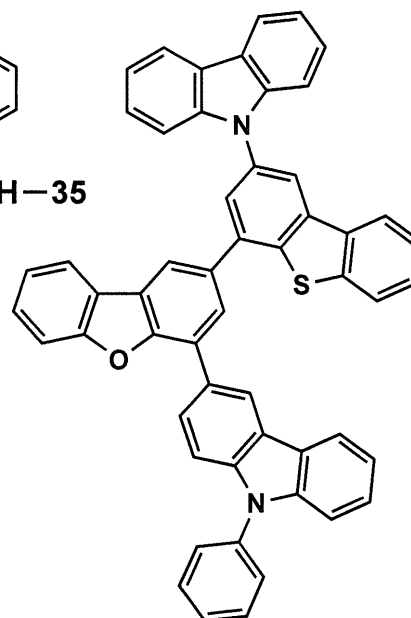
H-33



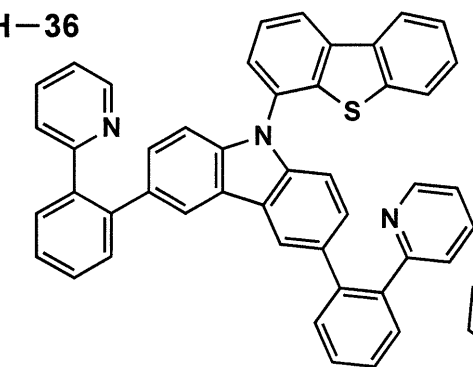
H-34



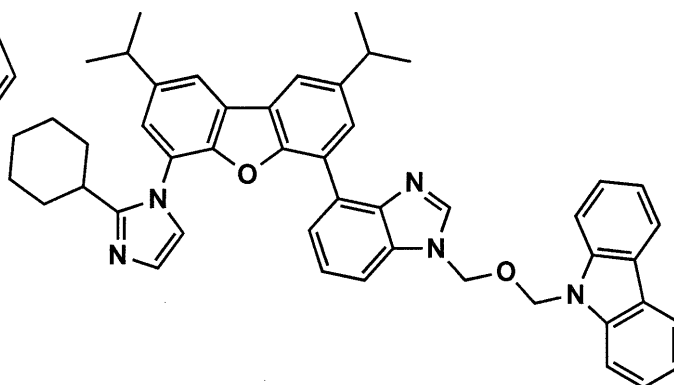
H-35



H-36



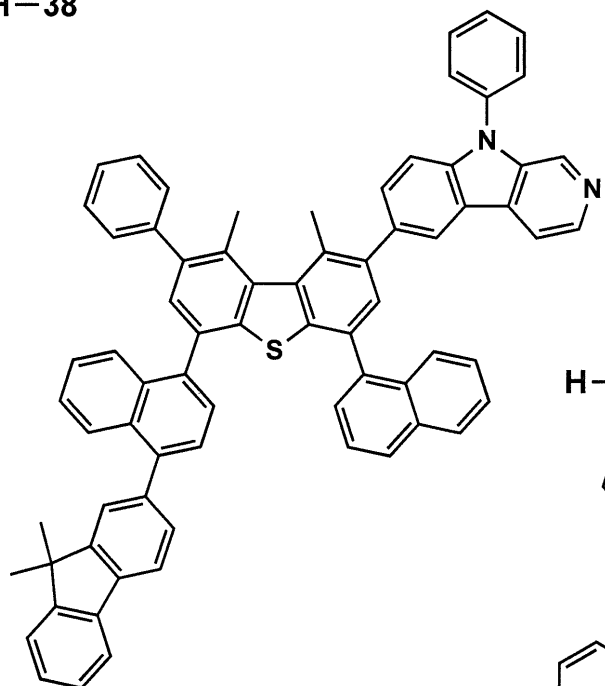
H-37



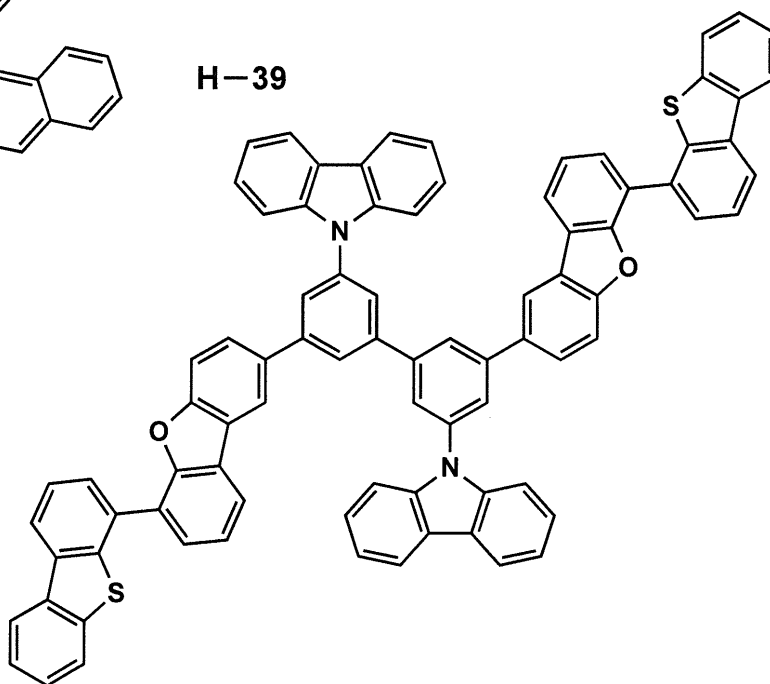
【 0 1 2 2】

【化 4 2】

H-38



H-39



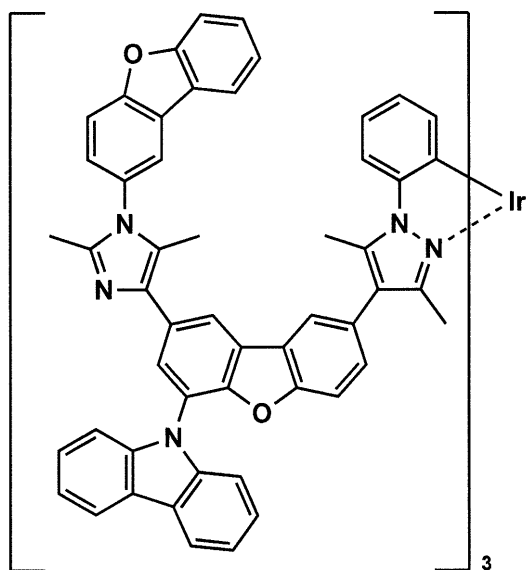
H-40



【 0 1 2 3 】

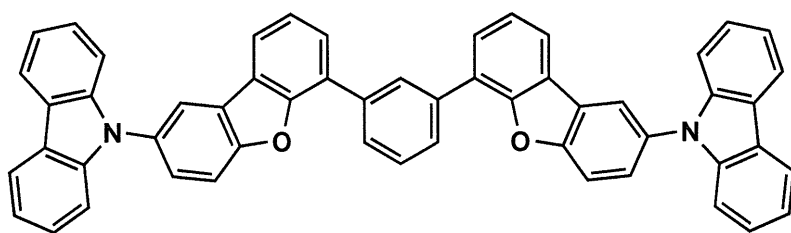
【化 4 3】

H-41



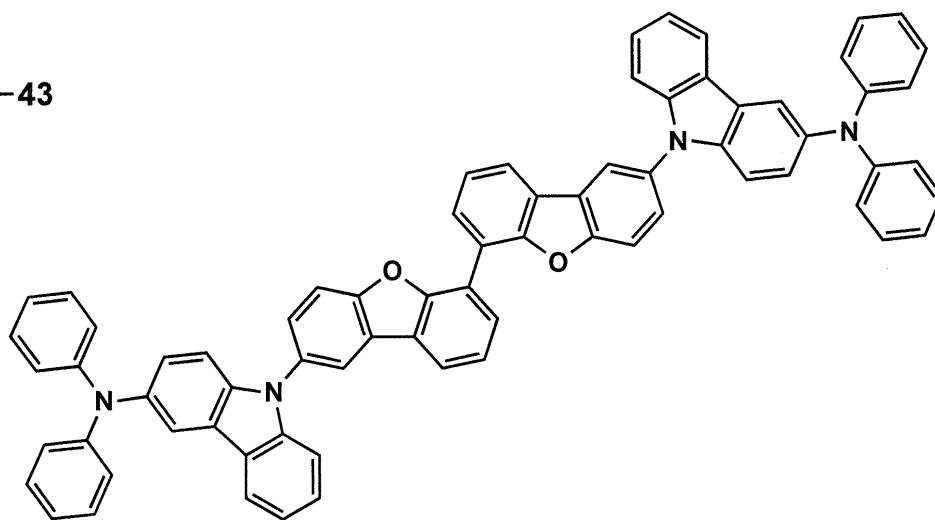
10

H-42



20

H-43

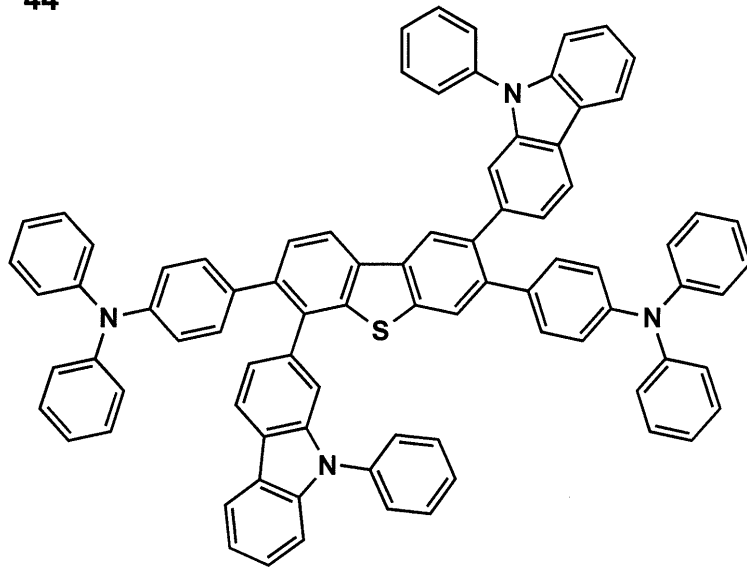


30

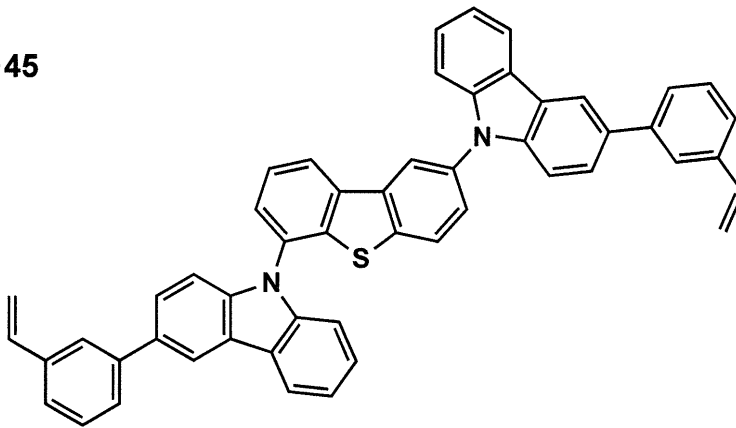
40

【 0 1 2 4 】

【化 4 4】

H-44

10

H-45

20

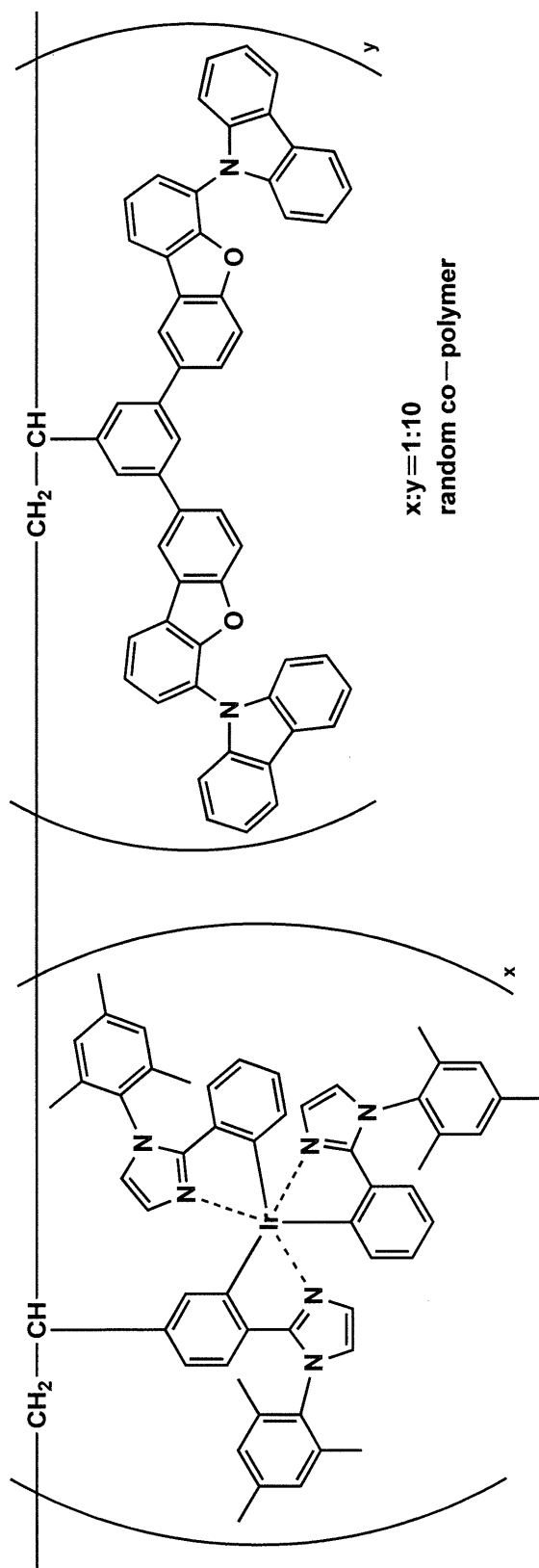
【 0 1 2 5 】

30

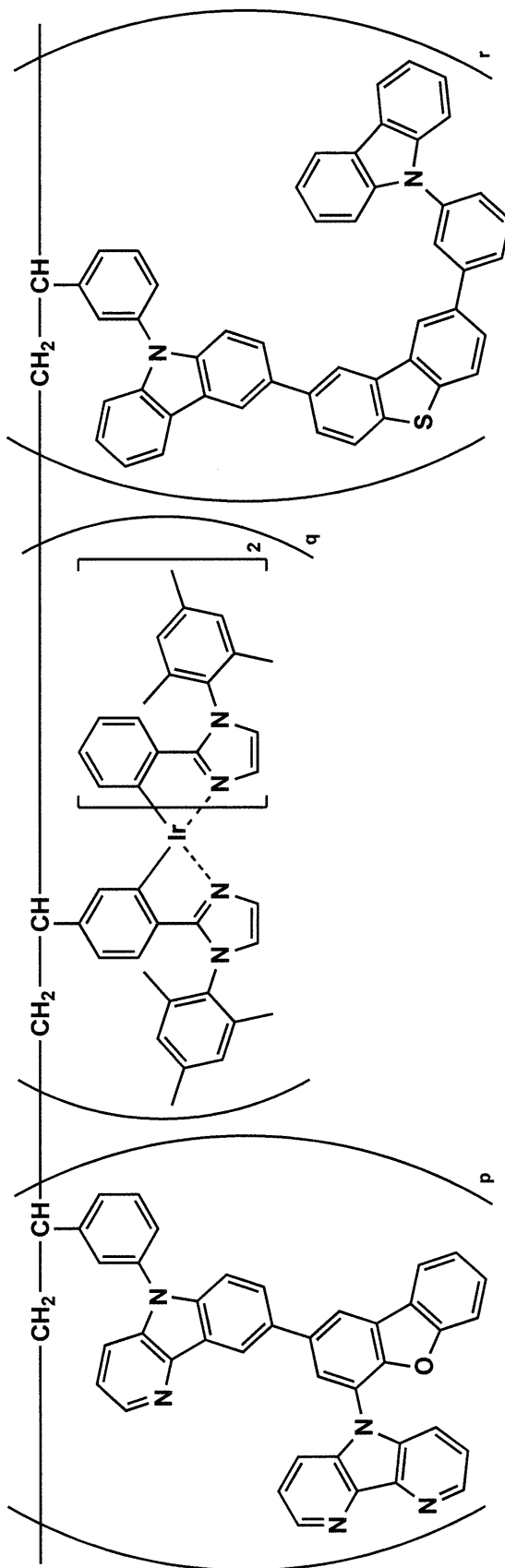
【化 4 5】

H-46

【 0 1 2 6 】



H-47



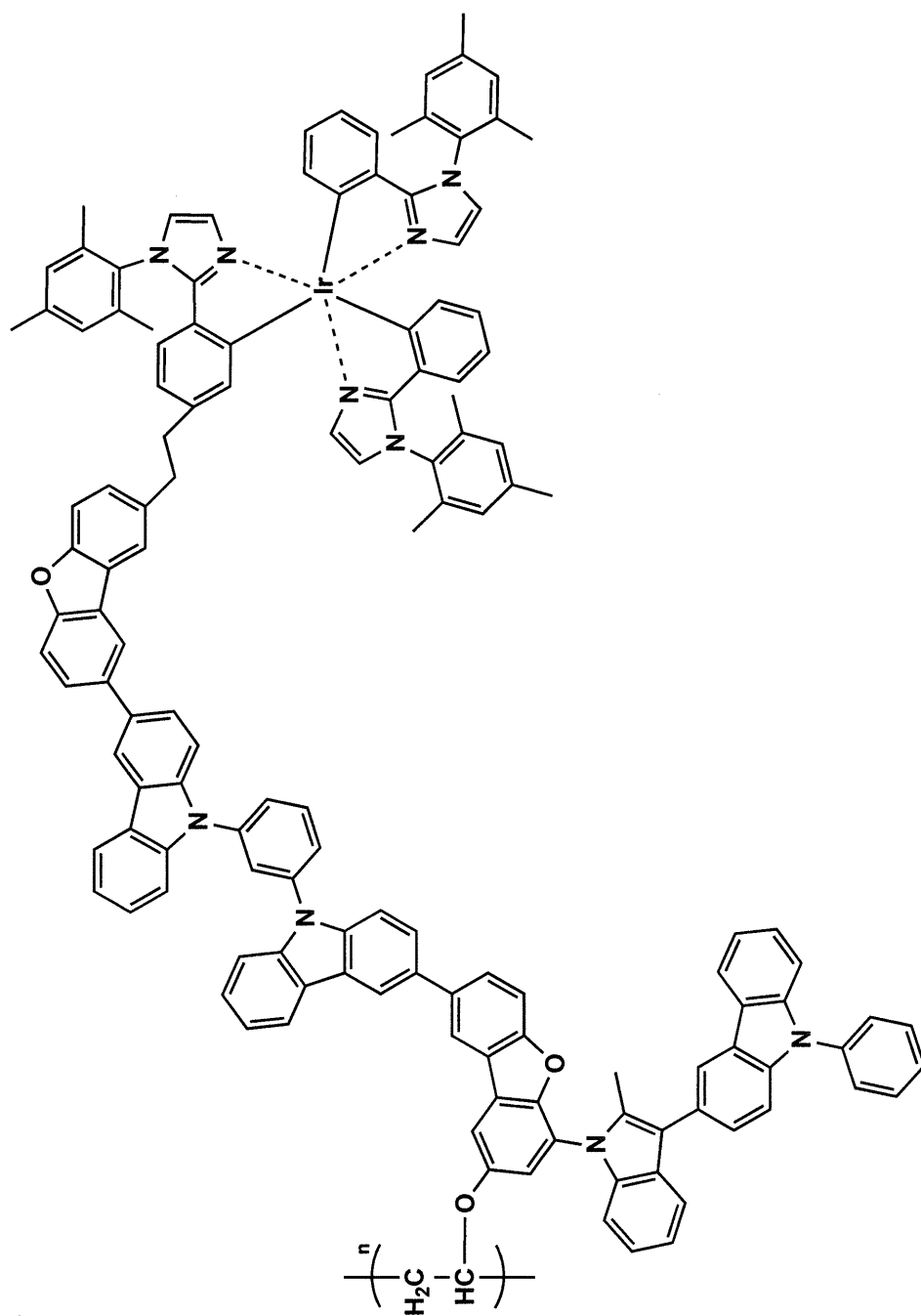
10

20

30

40

10



20

30

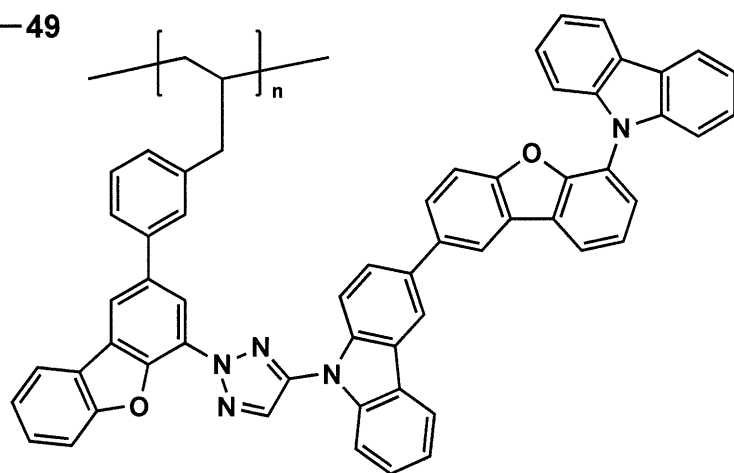
H-48

【 0 1 2 7 】

40

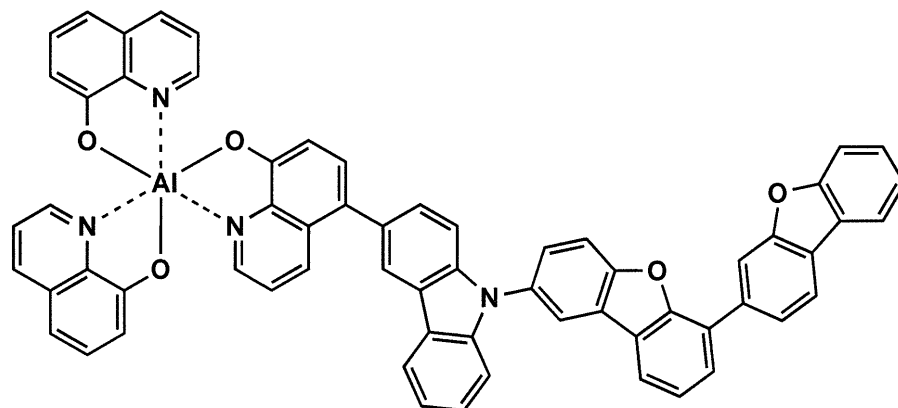
【化 4 7】

H-49



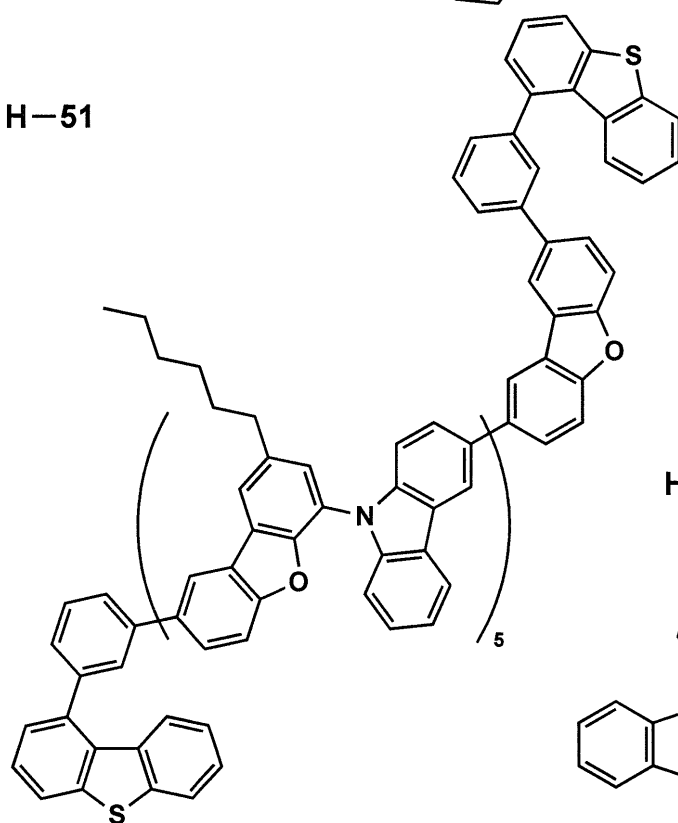
10

H-50



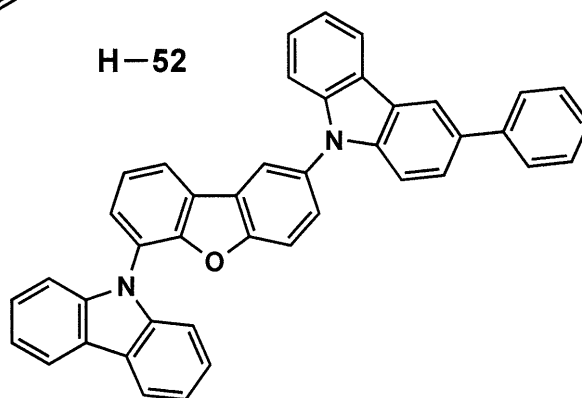
20

H-51



30

H-52

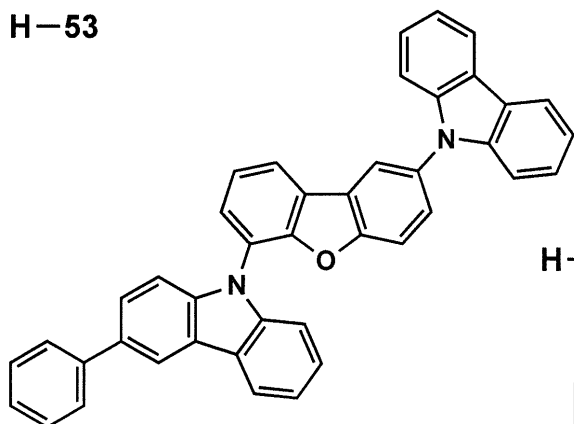


40

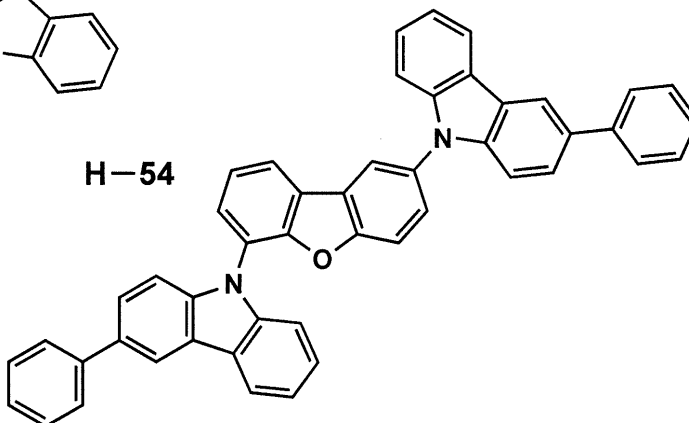
【 0 1 2 8 】

【化 4 8】

H-53

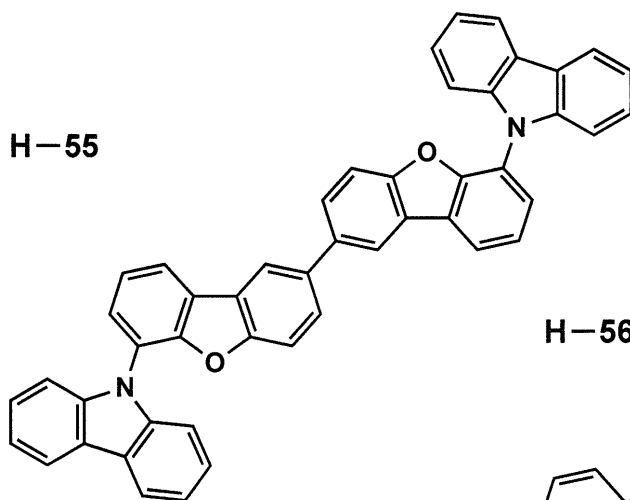


H-54



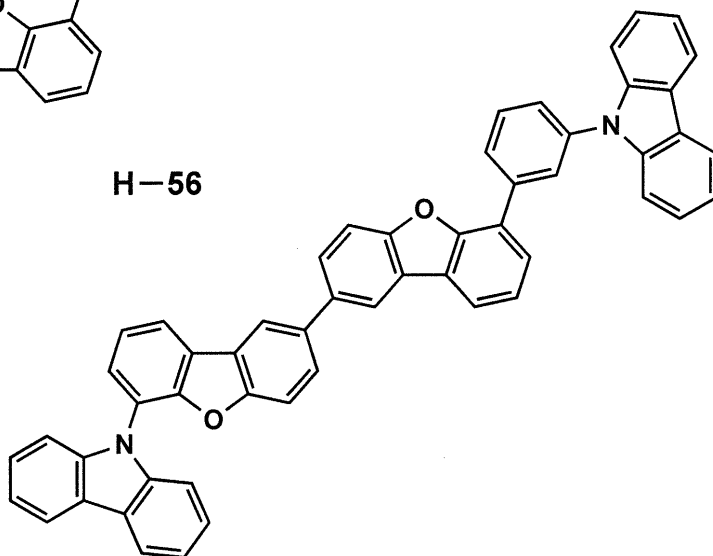
10

H-55



20

H-56



30

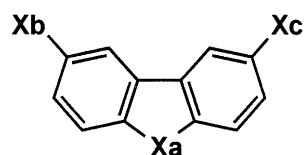
【 0 1 2 9】

また、本発明の有機 EL 素子の発光層の発光ホストとして、下記一般式 (A') で表される化合物も、特に好ましく用いられる。

【 0 1 3 0】

【化 4 9】

一般式(A')



40

【 0 1 3 1】

一般式 (A') 中、Xa は、酸素原子又は硫黄原子を表し、Xb 及び Xc は、各々置換基又は上記した一般式 (C) で表される基を表す。

Xb 及び Xc のうち少なくとも一つは上記した一般式 (C) で表される基を表し、該一般式 (C) で表される基のうち少なくとも一つは Ar がカルバゾリル基を表す。

【 0 1 3 2】

50

上記一般式 (A') で表される化合物においては、好ましくは、一般式 (C) の Ar が置換基を有していてもよいカルバゾリル基を表し、より好ましくは、一般式 (C) の Ar が置換基を有していてもよくかつ N 位で一般式 (C) における L₄ と連結したカルバゾリル基を表す。

【0133】

本発明の有機 EL 素子の発光層のホスト化合物 (発光ホストともいう。) として好ましく用いられる一般式 (A') で表される化合物は、具体的には、先に発光ホストとして用いられる具体例として挙げた、OC-9、OC-11、OC-12、OC-14、OC-18、OC-29、OC-30、OC-31 及び OC-32 が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

10

【0134】

《電子輸送層》

電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層及び正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は、単層若しくは複数層を設けることができる。

【0135】

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、電子輸送層の構成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併用することも可能である。

【0136】

電子輸送層に用いられる従来公知の材料 (以下、電子輸送材料という) 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多環芳香族炭化水素、複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体、カルボリン誘導体、カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の炭素原子の少なくとも一つが窒素原子で置換されている環構造を有する誘導体及びヘキサザトリフェニレン誘導体等が挙げられる。

20

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、電子吸引力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も電子輸送材料として用いることができる。

30

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

【0137】

また、8-キノリノール誘導体の有機金属錯体、例えば、トリス (8-キノリノール) アルミニウム (Alq)、トリス (5, 7-ジクロロ-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (5, 7-ジブromo-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (2-メチル-8-キノリノール) アルミニウム、トリス (5-メチル-8-キノリノール) アルミニウム及びビス (8-キノリノール) 亜鉛 (Znq) 等並びにこれらの有機金属錯体の中心金属がインジウム、マグネシウム、銅、カルシウム、スズ、ガリウム又は鉛に置き替わった有機金属錯体も電子輸送材料として用いることができる。

40

【0138】

その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも電子輸送材料として用いることができる。

また、n型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

【0139】

電子輸送層は電子輸送材料を、例えば、真空蒸着法又は湿式法 (ウェットプロセスともいい、例えば、スピンコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法、LB法 (ラングミュア・プロジェクト (Langmuir-Blodgett法) 等を挙げるこ

50

ができる。)) 等により、薄膜化することにより形成することが好ましい。

【0140】

電子輸送層の層厚については特に制限はないが、通常は5 ~ 5000 nm程度、好ましくは5 ~ 200 nmである。電子輸送層は、上記材料の一種又は二種以上からなる一層構造であってもよい。

【0141】

また、電子輸送層には、有機金属錯体やハロゲン化金属等のn型ドーパントをドーブして用いてもよい。

【0142】

公知の電子輸送材料の具体例としては、以下の文献に記載の化合物が挙げられる。例えば、特開2012-169325号公報の[0096]から[0104]に記載のET-1 ~ ET-39や特開2012-104536号公報の[0077]から[0082]に記載のE1-1 ~ E5-6等の化合物が挙げられる。

10

【0143】

《陰極》

陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物及び希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、リチウム/アルミニウム混合物又はアルミニウム等が好適である。

20

【0144】

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

30

【0145】

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

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

【0146】

《注入層：電子注入層(陰極バッファ層)、正孔注入層》

注入層は必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記のように陽極と発光層又は正孔輸送層の間、及び陰極と発光層又は電子輸送層との間に存在させてもよい。

40

【0147】

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123頁 ~ 166頁)に詳細に記載されており、正孔注入層(陽極バッファ層)と電子注入層(陰極バッファ層)とがある。

【0148】

陽極バッファ層(正孔注入層)は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、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層、特表2003-51943

50

2号公報や特開2006-135145号公報等に記載されているようなヘキサアザトリフェニレン誘導体バッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム錯体等に代表されるオルトメタル化錯体層等が挙げられる。

【0149】

陰極バッファ層（電子注入層）は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、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層、フッ化リチウム、フッ化カリウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウム、フッ化セシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。上記バッファ層（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層厚は0.1nm～5μmの範囲が好ましい。

10

【0150】

《阻止層：正孔阻止層、電子阻止層》

阻止層は、上記のように有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の237頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層がある。

20

【0151】

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

【0152】

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

【0153】

本発明の有機EL素子の正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられていることが好ましい。

30

【0154】

正孔阻止層には、前述の発光性ホスト化合物として挙げた、カルバゾール誘導体、カルボリン誘導体、ジアザカルバゾール誘導体（ここで、ジアザカルバゾール誘導体とは、カルボリン環を構成する炭素原子のいずれか一つが窒素原子で置き換わったものを示す）を含有することが好ましい。

【0155】

また、本発明においては、複数の発光色の異なる複数の発光層を有する場合、その発光極大波長が最も短波にある発光層が、全発光層中、最も陽極に近いことが好ましいが、このような場合、該最短波層と該層の次に陽極に近い発光層との間に正孔阻止層を追加して設けることが好ましい。更には、該位置に設けられる正孔阻止層に含有される化合物の50質量%以上が、前記最短波発光層のホスト化合物に対しそのイオン化ポテンシャルが0.3eV以上大きいことが好ましい。

40

【0156】

イオン化ポテンシャルは、化合物のHOMO（最高占有軌道）レベルにある電子を真空準位に放出するのに必要なエネルギーで定義され、例えば下記に示すような方法により求めることができる。

（1）米国Gaussian社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるGaussian98（Gaussian98、Revision A.11.4, M. J. Frisch, et al, Gaussian, Inc., Pittsburgh PA, 2002.）を用い、波動関数のキーワード（計算方法及び基底関数）としてB3LYP/6-31G*を用いて構造最適化を行うことにより算出した値（eV単位換算値）として求める

50

ことができる。この計算値が有効な背景には、この手法で求めた計算値と実験値の相関が高いためである。

(2) イオン化ポテンシャルは、光電子分光法で直接測定する方法により求めることもできる。例えば、理研計器社製の低エネルギー電子分光装置「Model AC-1」を用いて、又は紫外光電子分光として知られている方法を好適に用いることができる。

【0157】

一方、電子阻止層とは、広い意味では、正孔輸送層の機能を有し、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0158】

また、後述する正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。本発明に係る正孔阻止層、電子輸送層の層厚としては、好ましくは3～100nmであり、更に好ましくは5～30nmである。

【0159】

《正孔輸送層》

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

【0160】

正孔輸送材料としては、正孔の注入又は輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリ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は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。

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

【0161】

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、ボルフィリン化合物、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。

【0162】

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(TPD); 2, 2 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N' - テトラ - 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; N - フェニルカルバゾール、更には米国特許第5061569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4' - ビス[N - (1 - ナフチル) - N - フェニルア

10

20

30

40

50

ミノ〕ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが三つスターバースト型に連結された4,4',4"-トリス〔N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン(MTDATA)等が挙げられる。

【0163】

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

また、p型-Si、p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

【0164】

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

【0165】

正孔輸送層は上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。

正孔輸送層の層厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5~200nmである。この正孔輸送層は上記材料の一種又は二種以上からなる一層構造であってもよい。

【0166】

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

本発明においては、このようなp性の高い正孔輸送層を用いることが、より低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

【0167】

《陽極》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)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。

【0168】

また、IDIXO(In₂O₃-ZnO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、又はパターン精度を余り必要としない場合は(100μm以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。

【0169】

又は、有機導電性化合物のように塗布可能な物質を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。更に層厚は材料にもよるが、通常10~1000nm、好ましくは10~200nmの範囲で選ばれる。

【0170】

《支持基板》

本発明の有機EL素子に用いることのできる支持基板(以下、基体、基板、基材、支持体等ともいう。)としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また透

10

20

30

40

50

明であっても不透明であってもよい。支持基板側から光を取り出す場合には、支持基板は透明であることが好ましい。好ましく用いられる透明な支持基板としては、ガラス、石英、透明樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい支持基板は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

【0171】

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

10

【0172】

樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜又はその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよく、JIS K 7129 - 1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ 25 ± 0.5 、相対湿度（ 90 ± 2 ）%RH）が $1 \times 10^{-2} \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下のバリアー性フィルムであることが好ましく、更には、JIS K 7126 - 1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $1 \times 10^{-3} \text{ ml/m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm}$ 以下、水蒸気透過度が、 $1 \times 10^{-5} \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下の高バリアー性フィルムであることが好ましい。

20

【0173】

バリアー膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、窒化ケイ素等を用いることができる。更に該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることがより好ましい。無機層と有機層の積層順については特に制限はないが、両者を交互に複数回積層させることが好ましい。

30

【0174】

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

【0175】

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

40

【0176】

本発明の有機EL素子の発光の室温（ 25 ）における外部取り出し量子効率、 1% 以上であることが好ましく、 5% 以上であるとより好ましい。

【0177】

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

【0178】

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

50

ィルターを用いる場合においては、有機ＥＬ素子の発光の λ_{max} は４８０nm以下が好ましい。

【０１７９】

《有機ＥＬ素子の作製方法》

有機ＥＬ素子の作製方法の一例として、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層（電子注入層）／陰極からなる素子の作製方法について説明する。

【０１８０】

まず、適当な基体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の層厚になるように形成させ、陽極を作製する。

10

【０１８１】

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、正孔阻止層、電子輸送層及び陰極バッファ層等の有機化合物を含有する薄膜を形成させる。

【０１８２】

薄膜の形成方法としては、例えば、真空蒸着法、湿式法（ウェットプロセスともいう。）等により成膜して形成することができる。

湿式法としては、スピンコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法及びＬＢ法等があるが、精密な薄膜が形成可能で、且つ高生産性の点から、ダイコート法、ロールコート法、インクジェット法又はスプレーコート法などのロール・ｔｏ・ロール方式適性の高い方法が好ましい。また、層ごとに異なる成膜法を適用してもよい。

20

【０１８３】

本発明に係る有機ＥＬ素子用材料を溶解又は分散する液媒体としては、例えば、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、酢酸エチル等の脂肪酸エステル類、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族炭化水素類、シクロヘキサン、デカリン、ドデカン等の脂肪族炭化水素類又はＤＭＦ（*N,N'*-dimethylformamide）、ＤＭＳＯ（Dimethyl sulfoxide）等の有機溶媒を用いることができる。

また、分散方法としては、超音波、高剪断力分散やメディア分散等の分散方法により分散することができる。

30

【０１８４】

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の範囲の層厚になるように形成させ、陰極を設けることにより所望の有機ＥＬ素子が得られる。

【０１８５】

また、順序を逆にして、陰極、陰極バッファ層、電子輸送層、正孔阻止層、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。

【０１８６】

本発明の有機ＥＬ素子の作製は、１回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる成膜法を施しても構わない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行うことが好ましい。

40

【０１８７】

《封止》

本発明に用いられる封止手段としては、例えば、封止部材と電極及び封止部材と支持基板とを接着剤で接着する方法を挙げることができる。

【０１８８】

封止部材としては、有機ＥＬ素子の表示領域を覆うように配置されていればよく、凹板状でも平板状でもよい。また透明性、電気絶縁性は特に問わない。

【０１８９】

具体的には、ガラス板、ポリマー板・フィルム及び金属板・フィルム等が挙げられる。

50

ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス及び石英等を挙げることができる。

また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド及びポリサルフォン等から形成されたものを挙げることができる。

金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブテン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属又は合金からなるものが挙げられる。

【0190】

本発明においては、素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム又は金属フィルムを好ましく使用することができる。

更には、ポリマーフィルムは、JIS K 7126 - 1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ ml/m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm}$ 以下、JIS K 7129 - 1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度(25 ± 0.5 、相対湿度(90 ± 2)%RH)が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下のものであることが好ましい。

【0191】

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

【0192】

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

【0193】

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(25)から 80 までに接着硬化できるものが好ましい。また、前記接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。封止部分への接着剤の塗布は市販のディスペンサーを使ってもよいし、スクリーン印刷のように印刷してもよい。

【0194】

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

更に、該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることが好ましい。これらの膜の形成方法については、特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エビタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法又はコーティング法等を用いることができる。

【0195】

封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相及び液相では、窒素又は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。

【0196】

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antal、臭化セリウム、臭化マグネシウム、ヨウ化バリウム及びヨウ化マグネシウム等）及び過塩素酸類（例えば、過塩素酸バリウム及び過塩素酸マグネシウム等）等が挙げられ、硫酸塩、金属ハロゲン化物及び過塩素酸類においては無水塩が好適に用いられる。

【0197】

《保護膜、保護板》

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

10

【0198】

《光取り出し》

有機EL素子は空気よりも屈折率の高い（屈折率が1.7～2.1程度）層の内部で発光し、発光層で発生した光のうち15%から20%程度の光しか取り出せないことが一般的に言われている。これは、臨界角以上の角度 θ で界面（透明基板と空気との界面）に入射する光は、全反射を起こし素子外部に取り出すことができないことや、透明電極ないし発光層と透明基板との間で光が全反射を起こし、光が透明電極ないし発光層を導波し、結果として光が素子側面方向に逃げるためである。

20

【0199】

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

30

【0200】

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

40

【0201】

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

【0202】

透明電極と透明基板の間に低屈折率の媒質を光の波長よりも長い厚さで形成すると、透明電極から出てきた光は、媒質の屈折率が低いほど外部への取り出し効率が高くなる。

【0203】

低屈折率層としては、例えば、エアロゲル、多孔質シリカ、フッ化マグネシウム及びフッ素系ポリマー等が挙げられる。透明基板の屈折率は一般に1.5～1.7程度であるので、低屈折率層は屈折率がおよそ1.5以下であることが好ましい。また、更に1.35以下であることが好ましい。

50

【0204】

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

【0205】

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

10

【0206】

導入する回折格子は、二次元的な周期屈折率を持っていることが望ましい。これは発光層で発光する光はあらゆる方向にランダムに発生するので、ある方向にのみ周期的な屈折率分布を持っている一般的な1次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。

【0207】

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

【0208】

回折格子を導入する位置としては前述のとおり、いずれかの層間若しくは媒質中（透明基板内や透明電極内）でもよいが、光が発生する場所である有機発光層の近傍が望ましい。

20

【0209】

このとき、回折格子の周期は媒質中の光の波長の約 $1/2 \sim 3$ 倍程度が好ましい。

【0210】

回折格子の配列は正方形のラチス状、三角形のラチス状又はハニカムラチス状等、二次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

【0211】

《集光シート》

本発明の有機EL素子は基板の光取り出し側に、例えば、マイクロレンズアレイ状の構造を設けるように加工したり、又はいわゆる集光シートと組み合わせることにより、特定方向、例えば、素子発光面に対し正面方向に集光することにより、特定方向上の輝度を高めることができる。

30

【0212】

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

【0213】

集光シートとしては、例えば、液晶表示装置のLEDバックライトで実用化されているものを用いることが可能である。このようなシートとして、例えば、住友スリーエム社製輝度上昇フィルム（BEF）等を用いることができる。

40

プリズムシートの形状としては、例えば、基材に頂角 90° 、ピッチ $50 \mu\text{m}$ の 状のストライプが形成されたものであってもよいし、頂角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であってもよい。

【0214】

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

50

【 0 2 1 5 】

《用途》

本発明の有機 E L 素子は、表示デバイス、ディスプレイ及び各種発光光源として用いることができる。発光光源として、例えば、照明装置（家庭用照明、車内照明）、時計や液晶用バックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源及び光センサーの光源等が挙げられる。これらに限定するものではないが、特に液晶表示装置のバックライト及び照明用光源としての用途に有効に用いることができる。

【 0 2 1 6 】

本発明の有機 E L 素子においては、必要に応じ成膜時にメタルマスクやインクジェットプリンティング法等でパターニングを施してもよい。パターニングする場合は、電極のみをパターニングしてもよいし、電極と発光層をパターニングしてもよいし、素子全層をパターニングしてもよく、素子の作製においては、従来公知の方法を用いることができる。

10

【 0 2 1 7 】

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

【 0 2 1 8 】

また、本発明の有機 E L 素子が白色素子の場合には、白色とは、2度視野角正面輝度を上記方法により測定した際に、 1000 cd/m^2 でのCIE1931表色系における色度が $X = 0.33 \pm 0.07$ 、 $Y = 0.33 \pm 0.1$ の領域内にあることをいう。

20

【 0 2 1 9 】

《表示装置》

本発明の有機 E L 素子は、表示装置に好適に用いられる。表示装置は単色でも多色でもよいが、ここでは多色表示装置について説明する。

【 0 2 2 0 】

多色表示装置の場合は発光層形成時のみシャドーマスクを設け、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法又は印刷法等で膜を形成できる。

発光層のみパターニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、インクジェット法、スピンコート法及び印刷法である。

30

【 0 2 2 1 】

表示装置に具備される有機 E L 素子の構成は、必要に応じて上記の有機 E L 素子の構成例の中から選択される。

【 0 2 2 2 】

また、有機 E L 素子の製造方法は、上記の本発明の有機 E L 素子の製造の一態様に示したとおりである。

【 0 2 2 3 】

このようにして得られた多色表示装置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2～40V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。更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。

40

【 0 2 2 4 】

多色表示装置は、表示デバイス、ディスプレイ又は各種発光光源として用いることができる。表示デバイス又はディスプレイにおいて、青、赤及び緑発光の三種の有機 E L 素子を用いることによりフルカラーの表示が可能となる。

【 0 2 2 5 】

表示デバイス又はディスプレイとしては、テレビ、パソコン、モバイル機器、A/V機器、文字放送表示及び自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生す

50

る表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合は駆動方式は単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。

【0226】

発光光源としては家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

【0227】

以下、本発明の有機EL素子を有する表示装置の一例を図面に基づいて説明する。

図1は有機EL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EL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。

10

【0228】

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、表示部Aと制御部Bとを電氣的に接続する配線部C等を有する。

制御部Bは表示部Aと配線部Cを介して電氣的に接続され、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ごと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。

【0229】

20

図2はアクティブマトリクス方式による表示装置の模式図である。

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C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2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。

【0230】

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（詳細は図示していない）。

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。

30

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。

【0231】

次に、画素の発光プロセスを説明する。図3は画素の回路を示した概略図である。

画素は、有機EL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、コンデンサー13等を備えている。複数の画素に有機EL素子10として、赤色、緑色及び青色発光の有機EL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。

【0232】

40

図3において、制御部B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B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ー13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。

【0233】

画像データ信号の伝達により、コンデンサー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EL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EL素子10に

50

電流が供給される。

【0234】

制御部B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EL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EL素子10が発光する。

すなわち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL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3それぞれの有機EL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。

【0235】

ここで、有機EL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。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もよい。

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EL素子が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。

【0236】

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。

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。

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。

【0237】

《照明装置》

本発明の有機EL素子は、照明装置に好適に用いられる。

本発明の有機EL素子は、共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよい。このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるが、これらに限定されない。また、レーザー発振をさせることにより上記用途に使用してもよい。

また、本発明の有機EL素子は、照明用や露光光源のような一種のランプとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像を直接視認するタイプの表示装置（ディスプレイ）として使用してもよい。

動画再生用の表示装置として使用する場合は、パッシブマトリクス方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。又は、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を二種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。

【0238】

また、本発明の有機EL素子用材料は、照明装置として、実質的に白色の発光を生じる有機EL素子に適用できる。複数の発光材料により複数の発光色を同時に発光させて、混色することで白色発光を得る。複数の発光色の組み合わせとしては、赤色、緑色及び青色の3原色の三つの発光極大波長を含有させたものでもよいし、青色と黄色、青緑と橙色等の補色の関係を利用した二つの発光極大波長を含有したものでもよい。

また複数の発光色を得るための発光材料の組み合わせは、複数のリン光又は蛍光で発光する材料を複数組み合わせたもの、蛍光又はリン光で発光する発光材料と、発光材料から

10

20

30

40

50

の光を励起光として発光する色素材料との組み合わせたもののいずれでもよいが、本発明に係る白色有機ＥＬ素子においては、発光性ドーパントを複数組み合わせるだけでよい。

【０２３９】

また、本発明の有機ＥＬ素子材料の形成方法は、発光層、正孔輸送層又は電子輸送層等の形成時のみマスクを設け、マスクにより塗り分ける等単純に配置するだけでよい。他層は共通であるのでマスク等のパターニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法及び印刷法等で、例えば、電極膜を形成でき、生産性も向上する。

この方法によれば、複数色の発光素子をアレー状に並列配置した白色有機ＥＬ装置と異なり、素子自体が発光白色である。

発光層に用いる発光材料としては特に制限はなく、例えば、液晶表示素子におけるバックライトであれば、ＣＦ（カラーフィルター）特性に対応した波長範囲に適合するように、本発明に係る有機金属錯体又は公知の発光材料の中から任意のものを選択して組み合わせることで白色化すればよい。

【０２４０】

《照明装置の一態様》

本発明の有機ＥＬ素子を具備した、照明装置の一態様について説明する。

本発明の有機ＥＬ素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚さ３００μｍのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラックストラックＬＣ０６２９Ｂ）を適用した。これを陰極上に重ねて透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からＵＶ光を照射して、硬化させて、封止することで、図５及び図６に示すような照明装置を形成することができる。

【０２４１】

図５は、照明装置の概略図を示す。本発明の有機ＥＬ素子１０１は、ガラスカバー１０２で覆われている（なお、ガラスカバーでの封止作業は、有機ＥＬ素子１０１を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度９９．９９９％以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った。）。

【０２４２】

図６は、照明装置の断面図を示す。図６において、１０５は陰極、１０６は有機ＥＬ層、１０７は透明電極付きガラス基板を示す。なお、ガラスカバー１０２内には窒素ガス１０８が充填され、捕水剤１０９が設けられている。

【実施例】

【０２４３】

以下、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例において「部」又は「％」の表示を用いるが、特に断りがない限り「質量部」又は「質量％」を表す。

なお、以下に説明する実施例で用いられる化合物の構造を以下に示す。

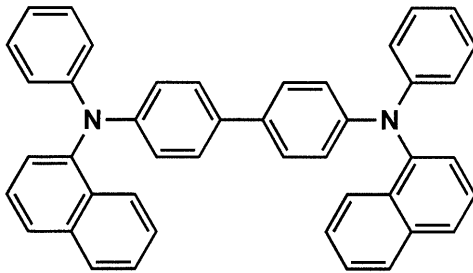
【０２４４】

10

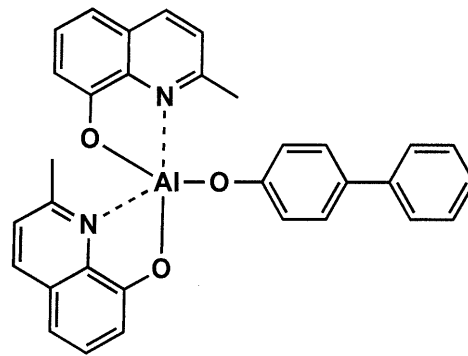
20

30

【化 5 0】

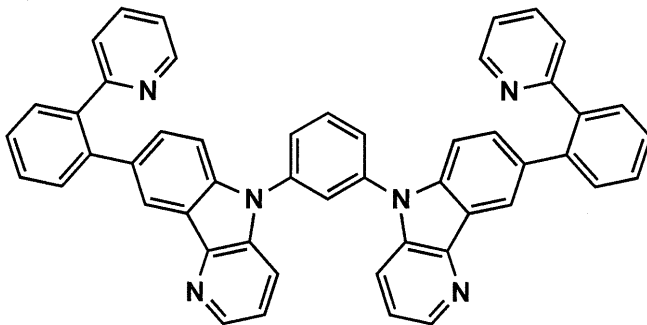
 α -NPD

ET-1



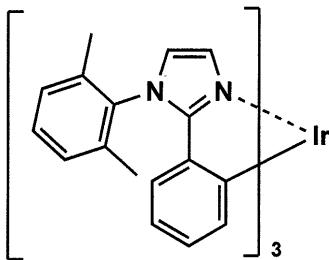
10

ET-2

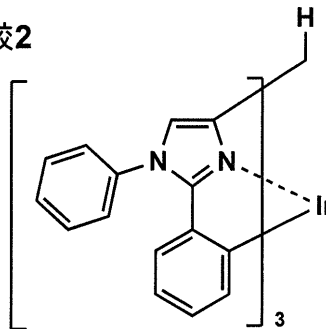


20

比較1



比較2



30

【 0 2 4 5】

[実施例 1]

《有機EL素子1-1の作製》

100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上に、陽極としてITO（インジウムチンオキsid）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

【 0 2 4 6】

この透明支持基板の上に、ポリ（3，4-エチレンジオキシチオフエン）-ポリスチレンスルホネート（PEDOT/PSS、H.C. スタルク社製、CLEVIO P VP AI 4083）を純水で70%に希釈した溶液を用い、3000rpm、30秒の条件でスピンコート法により薄膜を形成した後、200℃にて1時間乾燥し、層厚20nmの第1正孔輸送層を設けた。

40

【 0 2 4 7】

この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートに正孔輸送材料として α -NPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにホスト化合物としてOC-30を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに電子輸送材料としてET-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにドーパントとして比較1を100mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

【 0 2 4 8】

50

次いで真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、 α -NPD の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/秒 で透明支持基板上に蒸着し、層厚 20 nm の第 2 正孔輸送層を設けた。

【0249】

更に、ホスト化合物として OC-30 とドーパントとして比較 1 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.1 nm/秒 、 0.006 nm/秒 で前記第 2 正孔輸送層上に共蒸着して層厚 40 nm の発光層を設けた。

【0250】

更に ET-1 が入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/秒 で前記発光層上に蒸着して層厚 30 nm の電子輸送層を設けた。

10

なお、蒸着時の基板温度は室温 (25) であった。

【0251】

引き続き、フッ化リチウムを蒸着して層厚 0.5 nm の陰極バッファ層を形成し、更にアルミニウムを蒸着して層厚 110 nm の陰極を形成し、有機 EL 素子 1-1 を作製した。

【0252】

《有機 EL 素子 1-2 ~ 1-105 の作製》

有機 EL 素子 1-1 の作製において、発光層におけるドーパントを表 1-1 ~ 表 1-3 に記載の化合物に変更した。

それ以外は同様にして、有機 EL 素子 1-2 ~ 1-105 を各々作製した。

20

【0253】

《有機 EL 素子 1-1 ~ 1-105 の評価》

得られた有機 EL 素子 1-1 ~ 1-105 を評価するに際しては、作製後の各有機 EL 素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚さ $300 \mu\text{m}$ のガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材としてエポキシ系光硬化型接着剤 (東亜合成社製ラックストラック LC0629B) を適用し、これを上記陰極上に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側から UV 光を照射して硬化させて封止し、図 5 及び図 6 に示すような照明装置を作製して評価した。

このようにして作製した各サンプルについて下記の評価を行った。評価結果を表 1-1 ~ 表 1-3 に示す。

30

【0254】

(1) 外部取り出し量子効率 (単に、効率ともいう)

有機 EL 素子を室温 (25)、 2.5 mA/cm^2 の定電流条件下による点灯を行い、点灯開始直後の発光輝度 (L) [cd/m^2] を測定することにより、外部取り出し量子効率 (η) を算出した。

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

【0255】

(2) 半減寿命

下記に示す測定法に従って、半減寿命の評価を行った。

40

各有機 EL 素子を初期輝度 1000 cd/m^2 を与える電流で定電流駆動して、初期輝度の $1/2$ (500 cd/m^2) になる時間を求め、これを半減寿命の尺度とした。

なお、半減寿命は有機 EL 素子 1-1 を 100 とする相対値で表した。

【0256】

(3) 駆動時の電圧上昇

有機 EL 素子を室温 (25)、 2.5 mA/cm^2 の定電流条件下により駆動した時の電圧を各々測定し、測定結果を下記に示した計算式により計算した。

有機 EL 素子 1-1 を 100 とする相対値で表した。

駆動時の電圧上昇 (相対値) = 輝度半減時の駆動電圧 - 初期駆動電圧

なお、値が小さいほうが比較に対して駆動時の電圧上昇が小さいことを示す。

50

【 0 2 5 7 】

(4) 分子内水素結合形成可能な置換基の相対位置の算出

表 1 - 1 ~ 表 1 - 3 内の金属錯体 (ドーバント) の分子内水素結合形成可能な置換基の相対位置は、分子軌道計算ソフトウェア (米国 Gaussian 社製の gaussian 09) (Revision C . 01 , M . J . Frisch , et al , Gaussian , Inc . , 2010 .) を用いて計算した。

相対位置 500 pm 以下に分子内水素結合可能な場合は「」、相対位置 500 pm 以内に分子内水素結合可能な置換基が存在しない場合は「 - 」で表記した。

【 0 2 5 8 】

【表 1 - 1】

有機EL素子番号	ドーパント	電圧上昇	効率	半減寿命	相対位置	備考
1-1	比較 1	100	100	100	—	比較例
1-2	比較 2	120	89	112	—	比較例
1-3	D-101	58	132	276	◎	本発明
1-4	D-102	56	136	289	◎	本発明
1-5	D-103	45	142	257	◎	本発明
1-6	D-104	51	129	304	◎	本発明
1-7	D-105	56	123	301	◎	本発明
1-8	D-106	46	135	261	◎	本発明
1-9	D-107	44	132	269	◎	本発明
1-10	D-108	42	140	302	◎	本発明
1-11	D-109	43	145	291	◎	本発明
1-12	D-110	52	135	267	◎	本発明
1-13	D-111	45	144	304	◎	本発明
1-14	D-112	54	130	251	◎	本発明
1-15	D-113	50	150	287	◎	本発明
1-16	D-114	42	135	297	◎	本発明
1-17	D-115	44	129	312	◎	本発明
1-18	D-116	56	136	316	◎	本発明
1-19	D-117	46	134	262	◎	本発明
1-20	D-118	42	128	314	◎	本発明
1-21	D-119	70	131	318	◎	本発明
1-22	D-120	76	128	311	◎	本発明
1-23	D-121	70	138	298	◎	本発明
1-24	D-122	76	145	301	◎	本発明
1-25	D-123	75	139	251	◎	本発明
1-26	D-124	72	135	271	◎	本発明
1-27	D-125	73	128	309	◎	本発明
1-28	D-126	73	123	269	◎	本発明
1-29	D-127	71	149	257	◎	本発明
1-30	D-128	73	145	292	◎	本発明
1-31	D-129	77	125	262	◎	本発明
1-32	D-130	71	134	266	◎	本発明
1-33	D-131	79	144	309	◎	本発明
1-34	D-132	76	137	295	◎	本発明
1-35	D-133	72	136	259	◎	本発明
1-36	D-134	71	132	281	◎	本発明
1-37	D-135	79	144	250	◎	本発明
1-38	D-136	76	124	263	◎	本発明
1-39	D-137	73	139	288	◎	本発明

【表 1 - 2】

有機EL素子番号	ドーパント	電圧上昇	効率	半減寿命	相対位置	備考
1-40	D-138	73	131	276	◎	本発明
1-41	D-139	74	128	270	◎	本発明
1-42	D-140	74	150	260	◎	本発明
1-43	D-141	71	148	297	◎	本発明
1-44	D-142	79	136	311	◎	本発明
1-45	D-143	78	150	319	◎	本発明
1-46	D-144	79	141	258	◎	本発明
1-47	D-145	77	149	297	◎	本発明
1-48	D-146	76	130	290	◎	本発明
1-49	D-147	70	134	309	◎	本発明
1-50	D-148	73	125	307	◎	本発明
1-51	D-149	72	127	299	◎	本発明
1-52	D-150	79	126	305	◎	本発明
1-53	D-151	74	133	292	◎	本発明
1-54	D-152	79	135	301	◎	本発明
1-55	D-153	78	133	273	◎	本発明
1-56	D-154	72	146	260	◎	本発明
1-57	D-155	74	149	306	◎	本発明
1-58	D-156	71	135	280	◎	本発明
1-59	D-157	79	139	293	◎	本発明
1-60	D-158	72	129	264	◎	本発明
1-61	D-159	73	131	285	◎	本発明
1-62	D-160	76	125	258	◎	本発明
1-63	D-161	78	126	305	◎	本発明
1-64	D-162	74	148	271	◎	本発明
1-65	D-163	79	135	307	◎	本発明
1-66	D-164	77	146	313	◎	本発明
1-67	D-165	73	140	259	◎	本発明
1-68	D-166	79	144	258	◎	本発明
1-69	D-167	75	124	308	◎	本発明
1-70	D-168	75	135	286	◎	本発明
1-71	D-169	74	137	294	◎	本発明
1-72	D-170	74	133	257	◎	本発明
1-73	D-171	46	149	184	◎	本発明
1-74	D-172	44	134	198	◎	本発明
1-75	D-173	55	147	185	◎	本発明
1-76	D-174	43	127	184	◎	本発明
1-77	D-175	52	143	196	◎	本発明
1-78	D-176	53	129	190	◎	本発明

【表 1 - 3】

有機EL素子番号	ドーパント	電圧上昇	効率	半減寿命	相対位置	備考
1-79	D-177	48	133	199	◎	本発明
1-80	D-178	48	136	190	◎	本発明
1-81	D-179	52	135	199	◎	本発明
1-82	D-180	57	135	189	◎	本発明
1-83	D-181	40	132	199	◎	本発明
1-84	D-182	43	136	198	◎	本発明
1-85	D-183	56	129	191	◎	本発明
1-86	D-184	45	135	185	◎	本発明
1-87	D-185	50	143	181	◎	本発明
1-88	D-186	40	148	195	◎	本発明
1-89	D-187	52	130	188	◎	本発明
1-90	D-188	49	123	185	◎	本発明
1-91	D-189	53	145	182	◎	本発明
1-92	D-190	59	141	193	◎	本発明
1-93	D-191	42	124	192	◎	本発明
1-94	D-192	45	129	183	◎	本発明
1-95	D-193	50	127	198	◎	本発明
1-96	D-194	87	106	145	◎	本発明
1-97	D-195	91	113	133	◎	本発明
1-98	D-196	80	114	131	◎	本発明
1-99	D-197	88	106	148	◎	本発明
1-100	D-198	85	110	142	◎	本発明
1-101	D-199	90	110	132	◎	本発明
1-102	D-200	86	114	140	◎	本発明
1-103	D-201	85	110	145	◎	本発明
1-104	D-202	86	111	141	◎	本発明
1-105	D-203	84	109	150	◎	本発明

【0261】

表 1 - 1 ~ 表 1 - 3 に示す結果から明らかなように、本発明の有機 EL 素子 1 - 3 ~ 1 - 105 は、比較例の有機 EL 素子 1 - 1 及び 1 - 2 に対して、各々高い発光効率及び長寿命を示し、駆動時の電圧上昇も抑える等、素子としての特性が向上していることがわかる。また、相対位置 500 pm 以下に分子内水素結合可能であることがわかる。

【0262】

[実施例 2]

【0263】

《白色発光有機 EL 素子 2 - 1 の作製》

100 mm × 100 mm × 1.1 mm のガラス基板上に、陽極として ITO (インジウムチンオキシド) を 100 nm 製膜した基板 (NH テクノグラス社製 NA45) にパターニングを行った後、この ITO 透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UV オゾン洗浄を 5 分間行った。

【0264】

この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製

抵抗加熱ボートに正孔輸送材料として α -NPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにホスト化合物としてOC-11を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに電子輸送材料としてET-2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにドーパントとして比較1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにドーパントとしてD-10を100mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

【0265】

次いで真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、 α -NPDの入った前記加熱ボートをそれぞれ別々に通電して、蒸着速度0.1nm/秒で透明支持基板に蒸着し層厚20nmの第1正孔輸送層を設けた。

【0266】

更に、ホスト化合物としてOC-11、青色ドーパントとして比較1及び赤色ドーパントとしてD-10の入った前記加熱ボートに通電して、OC-11、比較1、及びD-10の蒸着速度が100:5:0.6になるように調節し、層厚30nmの厚さになるように蒸着して発光層を設けた。

【0267】

更に、ET-2が入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で前記発光層上に蒸着して層厚30nmの電子輸送層を設けた。

なお、蒸着時の基板温度は室温(25)であった。

【0268】

引き続き、フッ化リチウムを蒸着して層厚0.5nmの陰極バッファ層を形成し、更にアルミニウムを蒸着して層厚110nmの陰極を形成して、有機EL素子2-1を作製した。

【0269】

作製した有機EL素子2-1に通電したところほぼ白色の光が得られ、照明装置として使用できることが分かった。なお、例示の他の化合物に置き換えても同様に白色の発光が得られることが分かった。

【0270】

《有機EL素子2-2～2-69の作製》

有機EL素子2-1の作製において、発光層における青色ドーパントを表2-1及び表2-2に示す化合物に変更した。

それ以外は同様にして、有機EL素子2-2～2-69を各々作製した。

【0271】

《有機EL素子2-1～2-69の評価》

得られた有機EL素子2-1～2-69を評価するに際しては、当該有機EL素子を実施例1の有機EL素子1-1と同様に封止し、図5及び図6に示すような照明装置を作製して評価した。

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

【0272】

10

20

30

40

【表 2 - 1】

有機EL素子番号	青色ドーパント	電圧上昇	効率	半減寿命	備考
2 - 1	比較 1	100	100	100	比較例
2 - 2	比較 2	120	89	112	比較例
2 - 3	D - 101	58	123	302	本発明
2 - 4	D - 102	50	144	291	本発明
2 - 5	D - 103	47	146	277	本発明
2 - 6	D - 104	48	141	255	本発明
2 - 7	D - 105	57	144	262	本発明
2 - 8	D - 106	40	146	250	本発明
2 - 9	D - 107	48	136	295	本発明
2 - 10	D - 108	47	137	309	本発明
2 - 11	D - 109	57	128	297	本発明
2 - 12	D - 110	54	129	270	本発明
2 - 13	D - 111	53	145	302	本発明
2 - 14	D - 112	50	131	271	本発明
2 - 15	D - 113	55	136	250	本発明
2 - 16	D - 114	49	133	304	本発明
2 - 17	D - 115	40	131	288	本発明
2 - 18	D - 116	50	135	296	本発明
2 - 19	D - 117	40	147	269	本発明
2 - 20	D - 118	55	129	300	本発明
2 - 21	D - 119	72	143	273	本発明
2 - 22	D - 120	71	142	278	本発明
2 - 23	D - 121	72	130	304	本発明
2 - 24	D - 122	77	144	250	本発明
2 - 25	D - 123	78	151	265	本発明
2 - 26	D - 124	70	130	309	本発明
2 - 27	D - 125	70	146	263	本発明
2 - 28	D - 126	70	146	270	本発明
2 - 29	D - 127	72	132	311	本発明
2 - 30	D - 128	70	148	255	本発明
2 - 31	D - 129	77	136	287	本発明
2 - 32	D - 130	70	142	278	本発明
2 - 33	D - 131	78	136	275	本発明
2 - 34	D - 132	78	142	274	本発明
2 - 35	D - 133	72	143	269	本発明
2 - 36	D - 134	77	127	308	本発明
2 - 37	D - 135	77	124	255	本発明
2 - 38	D - 148	79	141	251	本発明
2 - 39	D - 149	74	135	283	本発明

【表 2 - 2】

有機EL素子番号	青色ドーパント	電圧上昇	効率	半減寿命	備考
2-40	D-150	75	147	273	本発明
2-41	D-153	75	150	312	本発明
2-42	D-154	70	136	294	本発明
2-43	D-155	78	128	263	本発明
2-44	D-156	79	147	308	本発明
2-45	D-157	70	131	292	本発明
2-46	D-158	70	142	275	本発明
2-47	D-165	77	132	310	本発明
2-48	D-166	72	131	307	本発明
2-49	D-167	74	124	292	本発明
2-50	D-168	76	124	260	本発明
2-51	D-169	78	144	272	本発明
2-52	D-170	71	127	305	本発明
2-53	D-171	48	143	199	本発明
2-54	D-172	51	133	182	本発明
2-55	D-173	49	127	195	本発明
2-56	D-174	51	136	180	本発明
2-57	D-175	46	131	199	本発明
2-58	D-176	53	129	181	本発明
2-59	D-177	58	142	185	本発明
2-60	D-178	53	149	185	本発明
2-61	D-179	58	140	182	本発明
2-62	D-184	48	129	197	本発明
2-63	D-185	42	147	194	本発明
2-64	D-186	54	128	182	本発明
2-65	D-187	45	144	181	本発明
2-66	D-188	44	127	187	本発明
2-67	D-189	46	151	186	本発明
2-68	D-191	48	137	196	本発明
2-69	D-193	46	134	189	本発明

【0274】

表 2 - 1 及び表 2 - 2 に示す結果から明らかなように、本発明の有機 EL 素子 2 - 3 ~ 2 - 69 は、比較例の有機 EL 素子 2 - 1 及び 2 - 2 に対して、高い発光効率及び長寿命を示し、駆動時の電圧上昇も抑える等、素子としての特性が向上していることがわかる。

【0275】

[実施例 3]

《有機 EL 素子 3 - 1 の作製》

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

【0276】

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

【0277】

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

10

【0278】

この第2正孔輸送層上に、ホスト化合物としてのOC-11及びドーパントとしての比較1の酢酸ブチル溶液を用い、スピンコート法により薄膜を形成し、120℃で1時間加熱乾燥し、層厚30nmの発光層を設けた。

【0279】

この発光層上に、電子輸送材料としてのET-2の1-ブタノール溶液を用い、スピンコート法により薄膜を形成し、層厚20nmの電子輸送層を設けた。

【0280】

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

20

【0281】

《有機EL素子3-2～3-105の作製》

有機EL素子3-1の作製において、発光層におけるドーパントを表3-1～表3-3に示す化合物に変更した。

それ以外は同様にして、有機EL素子3-2～3-105を各々作製した。

【0282】

《有機EL素子3-1～3-105の評価》

得られた有機EL素子3-1～3-105を評価するに際しては、当該有機EL素子を実施例1の有機EL素子1-1と同様に封止し、図5及び図6に示すような照明装置を作製して評価した。

30

このようにして作製した各サンプルに対し、実施例1と同様に、外部取り出し量子効率、半減寿命及び駆動時の電圧上昇について評価を行った。評価結果を表3-1～表3-3に示す。なお、表3-1～表3-3における外部取り出し量子効率、半減寿命及び駆動時の電圧上昇の測定結果は、有機EL素子3-1の測定値を100とする相対値で表した。

【0283】

【表 3 - 1】

有機EL素子番号	ドーパント	電圧上昇	効率	半減寿命	備考
3-1	比較 1	100	100	100	比較例
3-2	比較 2	140	81	102	比較例
3-3	D-101	33	119	374	本発明
3-4	D-102	37	129	353	本発明
3-5	D-103	36	122	427	本発明
3-6	D-104	39	127	378	本発明
3-7	D-105	32	117	438	本発明
3-8	D-106	36	125	411	本発明
3-9	D-107	32	119	425	本発明
3-10	D-108	31	122	363	本発明
3-11	D-109	34	129	434	本発明
3-12	D-110	33	138	414	本発明
3-13	D-111	39	117	433	本発明
3-14	D-112	38	124	390	本発明
3-15	D-113	34	129	433	本発明
3-16	D-114	34	125	360	本発明
3-17	D-115	37	110	392	本発明
3-18	D-116	31	118	396	本発明
3-19	D-117	37	129	421	本発明
3-20	D-118	37	134	371	本発明
3-21	D-119	62	114	379	本発明
3-22	D-120	66	124	411	本発明
3-23	D-121	57	130	426	本発明
3-24	D-122	64	124	384	本発明
3-25	D-123	57	115	385	本発明
3-26	D-124	55	111	419	本発明
3-27	D-125	65	124	399	本発明
3-28	D-126	70	120	352	本発明
3-29	D-127	63	121	414	本発明
3-30	D-128	53	125	367	本発明
3-31	D-129	69	123	412	本発明
3-32	D-130	50	122	397	本発明
3-33	D-131	58	134	439	本発明
3-34	D-132	56	124	424	本発明
3-35	D-133	65	133	383	本発明
3-36	D-134	64	111	422	本発明
3-37	D-135	72	125	414	本発明
3-38	D-136	54	139	435	本発明
3-39	D-137	58	110	359	本発明

【表 3 - 2】

有機EL素子番号	ドーパント	電圧上昇	効率	半減寿命	備考
3-40	D-138	69	134	432	本発明
3-41	D-139	51	110	438	本発明
3-42	D-140	51	130	426	本発明
3-43	D-141	67	130	423	本発明
3-44	D-142	54	115	379	本発明
3-45	D-143	70	137	361	本発明
3-46	D-144	69	135	416	本発明
3-47	D-145	60	135	437	本発明
3-48	D-146	50	130	438	本発明
3-49	D-147	73	137	439	本発明
3-50	D-148	74	120	375	本発明
3-51	D-149	53	111	373	本発明
3-52	D-150	55	115	355	本発明
3-53	D-151	61	126	448	本発明
3-54	D-152	51	138	393	本発明
3-55	D-153	62	123	438	本発明
3-56	D-154	73	118	354	本発明
3-57	D-155	55	133	371	本発明
3-58	D-156	55	127	400	本発明
3-59	D-157	61	114	380	本発明
3-60	D-158	67	135	360	本発明
3-61	D-159	68	139	395	本発明
3-62	D-160	61	130	376	本発明
3-63	D-161	54	138	426	本発明
3-64	D-162	70	121	361	本発明
3-65	D-163	73	112	385	本発明
3-66	D-164	64	137	370	本発明
3-67	D-165	56	137	374	本発明
3-68	D-166	59	136	389	本発明
3-69	D-167	69	113	415	本発明
3-70	D-168	58	116	416	本発明
3-71	D-169	70	110	436	本発明
3-72	D-170	67	120	359	本発明
3-73	D-171	32	130	238	本発明
3-74	D-172	34	130	242	本発明
3-75	D-173	31	134	231	本発明
3-76	D-174	33	137	269	本発明
3-77	D-175	32	123	202	本発明
3-78	D-176	30	138	275	本発明

【表 3 - 3】

有機EL素子番号	ドーパント	電圧上昇	効率	半減寿命	備考
3-79	D-177	38	129	267	本発明
3-80	D-178	36	121	230	本発明
3-81	D-179	35	114	203	本発明
3-82	D-180	32	135	235	本発明
3-83	D-181	33	139	279	本発明
3-84	D-182	31	129	219	本発明
3-85	D-183	30	111	268	本発明
3-86	D-184	36	115	242	本発明
3-87	D-185	33	127	211	本発明
3-88	D-186	32	113	275	本発明
3-89	D-187	35	117	277	本発明
3-90	D-188	33	138	220	本発明
3-91	D-189	37	112	218	本発明
3-92	D-190	35	131	272	本発明
3-93	D-191	31	120	261	本発明
3-94	D-192	32	116	260	本発明
3-95	D-193	35	129	255	本発明
3-96	D-194	70	113	233	本発明
3-97	D-195	72	116	219	本発明
3-98	D-196	74	112	243	本発明
3-99	D-197	73	115	229	本発明
3-100	D-198	73	115	256	本発明
3-101	D-199	73	111	257	本発明
3-102	D-200	74	114	246	本発明
3-103	D-201	70	117	212	本発明
3-104	D-202	73	112	217	本発明
3-105	D-203	72	116	211	本発明

【0286】

表 3 - 1 ~ 表 3 - 3 に示す結果から明らかなように、本発明の有機 E L 素子 3 - 3 ~ 3 - 105 は、比較例の有機 E L 素子 3 - 1 及び 3 - 2 に対して、高い発光効率及び長寿命を示し、駆動時の電圧上昇を抑える等、素子としての特性が向上していることがわかる。

【0287】

[実施例 4]

《有機 E L 素子 4 - 1 ~ 4 - 37 の作製》

実施例 1 に記載の有機 E L 素子 1 - 1 の作製において、発光層におけるドーパントを表 4 に記載の化合物に変更した。

それ以外は同様にして、有機 E L 素子 4 - 1 ~ 4 - 37 を各々作製した。

【0288】

《有機 E L 素子 4 - 1 ~ 4 - 37 の評価》

得られた有機 E L 素子 4 - 1 ~ 4 - 37 を評価するに際しては、当該有機 E L 素子を実施例 1 の有機 E L 素子 1 - 1 と同様に封止し、図 5 及び図 6 に示すような照明装置を作製して評価した。

このようにして作製した各サンプルについて下記の評価を行った。評価結果を表 4 に示

す。

(1) 熱安定性評価

有機 E L 素子 4 - 1 ~ 4 - 3 7 について、同じ蒸着ボート (モリブデン製抵抗加熱ボート) を用い、同じ構成の素子を 5 素子ずつ作製した (例えば、有機 E L 素子 4 - 1 , 4 - 1 b , 4 - 1 c , 4 - 1 d , 4 - 1 e) 。

それぞれ 1 回目に作製した素子 (例えば、有機 E L 素子 4 - 1) 、3 回目に作製した素子 (例えば、有機 E L 素子 4 - 1 c) 、5 回目に作製した素子 (例えば、有機 E L 素子 4 - 1 e) のそれぞれについて上記と同様の方法で半減寿命を測定した。各素子の半減寿命は、1 回目に作製した有機 E L 素子 4 - 1 を 1 0 0 とする相対値で表した。

【 0 2 8 9 】

【表 4】

有機EL素子番号	ドーパント	半減寿命			備考
		1回目	3回目	5回目	
4-1	比較 1	100	80	65	比較例
4-2	比較 2	112	63	25	比較例
4-3	D-101	276	272	272	本発明
4-4	D-102	289	286	285	本発明
4-5	D-103	257	253	254	本発明
4-6	D-104	304	301	300	本発明
4-7	D-105	301	297	296	本発明
4-8	D-106	261	256	257	本発明
4-9	D-107	269	266	265	本発明
4-10	D-108	302	299	297	本発明
4-11	D-109	291	287	288	本発明
4-12	D-110	267	257	253	本発明
4-13	D-111	304	293	287	本発明
4-14	D-112	251	232	237	本発明
4-15	D-113	287	274	269	本発明
4-16	D-114	297	285	284	本発明
4-17	D-115	312	306	296	本発明
4-18	D-116	316	308	298	本発明
4-19	D-117	262	252	248	本発明
4-20	D-118	314	300	299	本発明
4-21	D-119	318	300	299	本発明
4-22	D-120	311	299	293	本発明
4-23	D-121	298	279	281	本発明
4-24	D-122	301	289	285	本発明
4-25	D-123	251	234	234	本発明
4-26	D-124	271	258	252	本発明
4-27	D-125	309	298	294	本発明
4-28	D-126	269	252	252	本発明
4-29	D-127	257	243	238	本発明
4-30	D-128	292	274	275	本発明
4-31	D-129	262	249	246	本発明
4-32	D-130	266	252	247	本発明
4-33	D-131	309	295	292	本発明
4-34	D-132	295	283	279	本発明
4-35	D-133	259	245	240	本発明
4-36	D-134	281	268	265	本発明
4-37	D-135	250	234	235	本発明

【0290】

表 4 に示す結果から明らかなように、比較例の有機 EL 素子 4 - 1 及び 4 - 2 は、1 回目に作製された素子、3 回目に作製された素子、5 回目に作製された素子、と半減寿命が

徐々に低下していくのに対して、本発明の有機ＥＬ素子４－３～４－３７は、１回目に作製された素子、３回目に作製された素子、５回目素子に作製された素子、と半減寿命がほとんど低下しておらず、本発明の有機ＥＬ素子に用いられているドーパントは熱安定性に優れていることがわかる。

【０２９１】

[実施例５]

《有機ＥＬ素子５－１の作製》

実施例１に記載の有機ＥＬ素子１－１と同様の化合物及び同様の方法で有機ＥＬ素子５－１を作製した。

【０２９２】

《有機ＥＬ素子５－２～５－８の作製》

有機ＥＬ素子５－１の作製において、電子輸送材料ＥＴ－１を表５に示す化合物に変更し、それ以外は同様にして、有機ＥＬ素子５－２～５－８を各々作製した。

【０２９３】

《有機ＥＬ素子５－１～５－８の評価》

得られた有機ＥＬ素子５－１～５－８を評価するに際しては、当該有機ＥＬ素子を実施例１の有機ＥＬ素子１－１と同様に封止し、図５及び図６に示すような照明装置を作製して評価した。

このようにして作製した各サンプルについて下記の評価を行った。評価結果を表５に示す。

【０２９４】

(１) 黒点

初期輝度の半分の輝度となるまで連続点灯を行った有機ＥＬ素子を、マイクロスコープ（モリテックス社製ＭＳ－８０４、レンズＭＰ－ＺＥ２５－２００）で撮影した。撮影画像を目視で観察し黒点（ダークスポット）の状況を調べた。発光面を１００分割し、黒点の発生した数から黒点の発生割合を算出し、下記基準で評価した。

：黒点発生率０％（黒点が全く発生しない）

○：黒点発生率１％以上５％未満

：黒点発生率５％以上１０％未満

×：黒点発生率１０％以上

【０２９５】

【表５】

有機ＥＬ素子番号	電子輸送材料	黒点	備考
５－１	ＥＴ－１	△	比較例
５－２	Ｄ－２０７	◎	本発明
５－３	Ｄ－２０８	○	本発明
５－４	Ｄ－２０９	○	本発明
５－５	Ｄ－２１０	◎	本発明
５－６	Ｄ－２１１	◎	本発明
５－７	Ｄ－２１２	◎	本発明
５－８	Ｄ－２１３	◎	本発明

【０２９６】

表５に示す結果から明らかなように、本発明に係る有機金属錯体を用いて作製した有機ＥＬ素子は、比較例の有機ＥＬ素子に比べ、黒点の生成が抑制されていることがわかる。

【０２９７】

[実施例６]

《インク組成物の調製》

色素材料Ｃ－１（特開平１０－２６４５４１号公報記載の色素）１．２ｇ、ポリビニル

10

20

30

40

50

アセタール樹脂（KY - 24：電気化学工業製）2.3 g、シリコン編成ウレタン樹脂（SP - 2105：大日精化製）1.8 gをメチルエチルケトン53 g及びトルエン22 gの混合溶液に溶解し、インク組成物を調製した。

【0298】

《評価シート6 - 1の作製》

上記インク組成物を、厚さ6 μm のポリエチレンテレフタレート（PET）ベース上にワイヤーバーを用いて乾燥後の塗布量が2.0 g / m^2 になるように塗布・乾燥して、PETベース上に色素含有層を有する色素画像の評価シート6 - 1を作製した。評価シートの乾燥は、ドライヤーで仮乾燥後、70 のオープン中で15分行った。

【0299】

10

《評価シート6 - 2～6 - 115の作製》

評価シート6 - 1の作製で用いたインク組成物に、表6 - 1～表6 - 3に示す金属錯体0.2 gを追加した以外は同様の方法で評価シート6 - 2～6 - 115を作製した。

【0300】

このようにして作製した各評価シートについて下記の評価を行った。評価結果を表6 - 1～表6 - 3に示す。

【0301】

（1）評価用色素画像の評価

画像の最大反射濃度は、X - r i t e 310TRを用いて測定した。色素画像をキセノンフェードメーターで72時間光照射し、光照射前の濃度をD0、光照射後の濃度をD1として、 $(D1 / D0) \times 100$ で求めた色素残存率（%）で評価した。

20

【0302】

【表 6 - 1】

評価シート番号	金属錯体	残存率(%)	備考
6-1	なし	12	比較例
6-2	ET-1	42	比較例
6-3	D-101	84	本発明
6-4	D-102	73	本発明
6-5	D-103	83	本発明
6-6	D-104	69	本発明
6-7	D-105	66	本発明
6-8	D-106	66	本発明
6-9	D-107	81	本発明
6-10	D-108	81	本発明
6-11	D-109	68	本発明
6-12	D-110	86	本発明
6-13	D-111	71	本発明
6-14	D-112	85	本発明
6-15	D-113	79	本発明
6-16	D-114	63	本発明
6-17	D-115	81	本発明
6-18	D-116	78	本発明
6-19	D-117	70	本発明
6-20	D-118	62	本発明
6-21	D-119	86	本発明
6-22	D-120	76	本発明
6-23	D-121	89	本発明
6-24	D-122	60	本発明
6-25	D-123	70	本発明
6-26	D-124	73	本発明
6-27	D-125	71	本発明
6-28	D-126	75	本発明
6-29	D-127	76	本発明
6-30	D-128	60	本発明
6-31	D-129	73	本発明
6-32	D-130	66	本発明
6-33	D-131	86	本発明
6-34	D-132	84	本発明
6-35	D-133	73	本発明
6-36	D-134	60	本発明
6-37	D-135	65	本発明
6-38	D-136	70	本発明
6-39	D-137	76	本発明

【 0 3 0 3 】

10

20

30

40

【表 6 - 2】

評価シート番号	金属錯体	残存率(%)	備考
6-40	D-138	74	本発明
6-41	D-139	85	本発明
6-42	D-140	64	本発明
6-43	D-141	68	本発明
6-44	D-142	86	本発明
6-45	D-143	86	本発明
6-46	D-144	73	本発明
6-47	D-145	83	本発明
6-48	D-146	67	本発明
6-49	D-147	87	本発明
6-50	D-148	64	本発明
6-51	D-149	79	本発明
6-52	D-150	68	本発明
6-53	D-151	74	本発明
6-54	D-152	79	本発明
6-55	D-153	63	本発明
6-56	D-154	79	本発明
6-57	D-155	71	本発明
6-58	D-156	74	本発明
6-59	D-157	87	本発明
6-60	D-158	73	本発明
6-61	D-159	65	本発明
6-62	D-160	70	本発明
6-63	D-161	60	本発明
6-64	D-162	88	本発明
6-65	D-163	62	本発明
6-66	D-164	81	本発明
6-67	D-165	75	本発明
6-68	D-166	66	本発明
6-69	D-167	65	本発明
6-70	D-168	69	本発明
6-71	D-169	82	本発明
6-72	D-170	86	本発明
6-73	D-171	67	本発明
6-74	D-172	60	本発明
6-75	D-173	77	本発明
6-76	D-174	80	本発明
6-77	D-175	81	本発明
6-78	D-176	75	本発明

【表 6 - 3】

評価シート番号	金属錯体	残存率(%)	備考
6-79	D-177	60	本発明
6-80	D-178	72	本発明
6-81	D-179	81	本発明
6-82	D-180	63	本発明
6-83	D-181	77	本発明
6-84	D-182	87	本発明
6-85	D-183	82	本発明
6-86	D-184	76	本発明
6-87	D-185	88	本発明
6-88	D-186	85	本発明
6-89	D-187	79	本発明
6-90	D-188	65	本発明
6-91	D-189	76	本発明
6-92	D-190	71	本発明
6-93	D-191	86	本発明
6-94	D-192	76	本発明
6-95	D-193	68	本発明
6-96	D-194	74	本発明
6-97	D-195	67	本発明
6-98	D-196	62	本発明
6-99	D-197	69	本発明
6-100	D-198	60	本発明
6-101	D-199	64	本発明
6-102	D-200	79	本発明
6-103	D-201	89	本発明
6-104	D-202	85	本発明
6-105	D-203	83	本発明
6-106	D-204	89	本発明
6-107	D-205	65	本発明
6-108	D-206	73	本発明
6-109	D-207	78	本発明
6-110	D-208	79	本発明
6-111	D-209	80	本発明
6-112	D-210	72	本発明
6-113	D-211	78	本発明
6-114	D-212	64	本発明
6-115	D-213	88	本発明

【0305】

表 6 - 1 ~ 表 6 - 3 に示す結果から明らかなように、本発明の評価シート 6 - 3 ~ 6 - 115 は、比較例の評価シート 6 - 1 及び 6 - 2 に対して、各々色素残存率が向上していることがわかる。

【符号の説明】

10

20

30

40

50

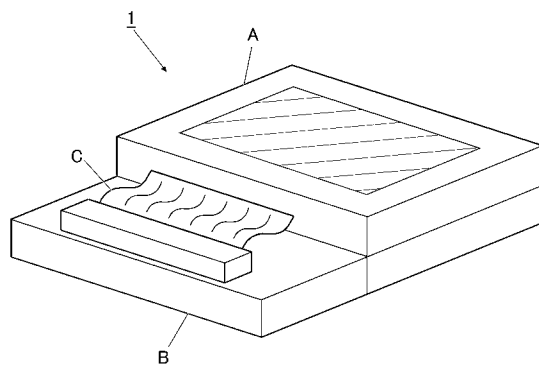
【 0 3 0 6 】

- 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 E L 素子
- 11 スイッチングトランジスタ
- 12 駆動トランジスタ
- 13 コンデンサー
- 101 有機 E L 素子
- 102 ガラスカバー
- 105 陰極
- 106 有機 E L 層
- 107 透明電極付きガラス基板
- 108 窒素ガス
- 109 捕水剤
- A 表示部
- B 制御部
- C 配線部

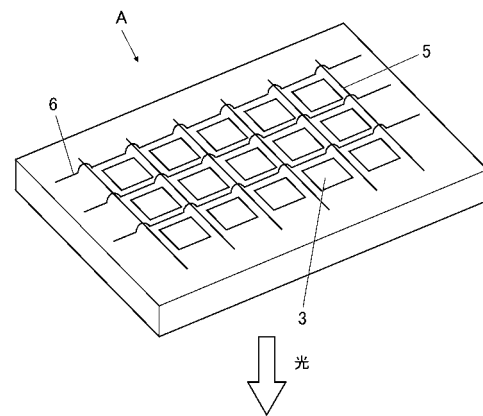
10

20

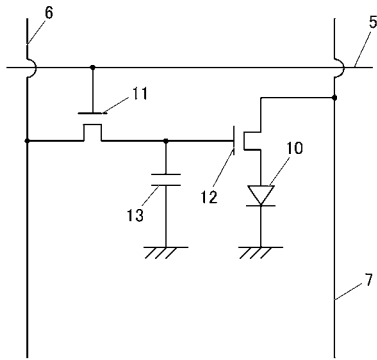
【 図 1 】



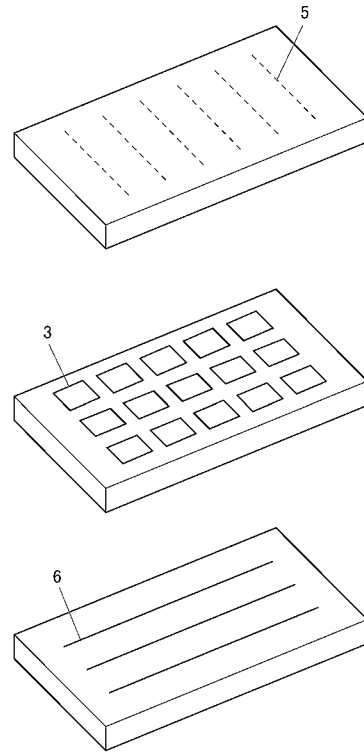
【 図 2 】



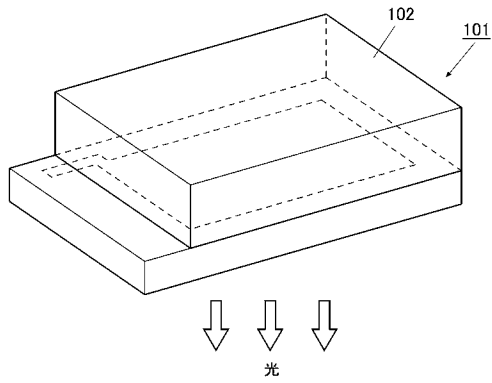
【 図 3 】



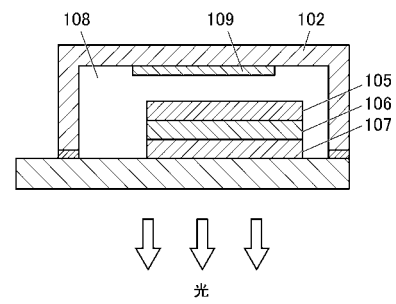
【 図 4 】



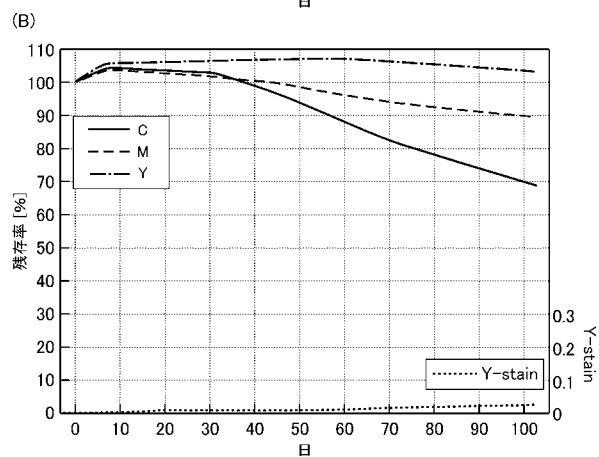
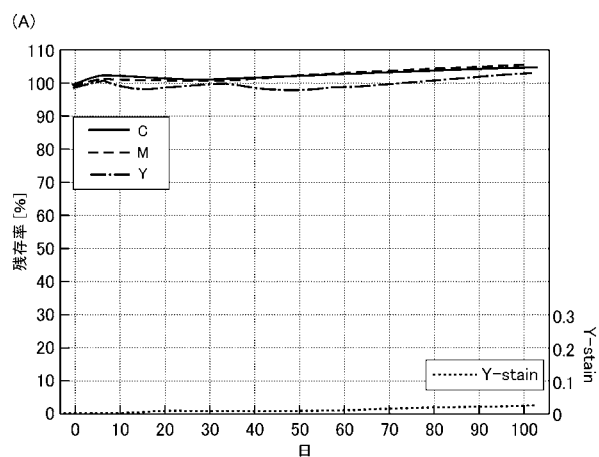
【 図 5 】



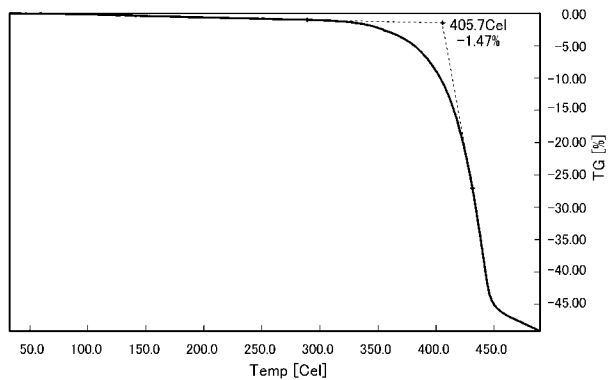
【 図 6 】



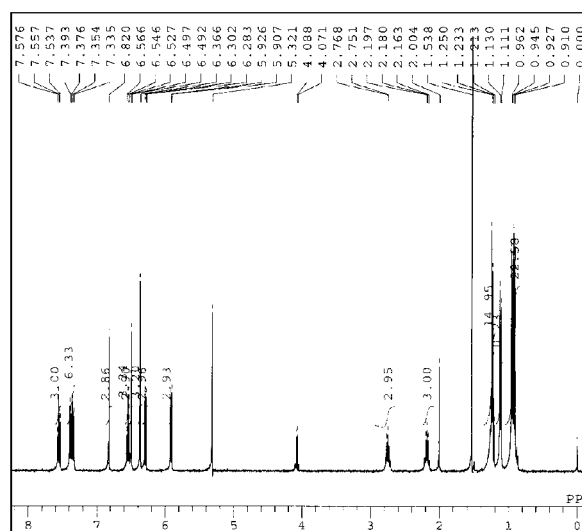
【 図 7 】



【 図 9 】



【 図 8 】



フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)
C 0 7 D 405/04	(2006.01)	C 0 7 D	405/04	4 C 0 6 9
C 0 7 D 401/04	(2006.01)	C 0 7 D	401/04	
C 0 7 D 413/04	(2006.01)	C 0 7 D	413/04	
C 0 7 D 407/04	(2006.01)	C 0 7 D	407/04	
C 0 7 D 213/16	(2006.01)	C 0 7 D	213/16	
C 0 7 D 213/79	(2006.01)	C 0 7 D	213/79	
C 0 7 D 213/26	(2006.01)	C 0 7 D	213/26	
C 0 7 D 213/30	(2006.01)	C 0 7 D	213/30	
C 0 7 D 213/22	(2006.01)	C 0 7 D	213/22	
C 0 7 D 217/02	(2006.01)	C 0 7 D	217/02	
C 0 7 D 207/335	(2006.01)	C 0 7 D	207/335	
C 0 7 D 233/58	(2006.01)	C 0 7 D	233/58	
C 0 7 D 471/04	(2006.01)	C 0 7 D	471/04	1 0 3 H
C 0 7 D 471/14	(2006.01)	C 0 7 D	471/14	1 0 1
		C 0 7 D	471/04	1 0 7 Z

(72)発明者 北 弘志

東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 BB04 BB06 BB07 BB08 CC12 CC22
 CC27 DD64 DD67 DD70 GG06
 4C034 AA02
 4C055 AA01 BA02 BA08 BA13 BA16 BA29 BA57 BB04 CA01 DA01
 4C063 AA01 AA03 BB01 BB08 CC12 CC23 CC41 CC42 CC52 CC76
 CC94 DD08 DD12 DD23 EE10
 4C065 AA03 AA04 AA18 BB04 BB05 BB09 CC03 CC09 DD02 DD03
 EE02 EE03 HH01 JJ01 KK02 KK09 LL01 PP03 PP09
 4C069 AC38 BA03 BB34

专利名称(译)	用于有机电致发光器件，有机电致发光器件和有机金属配合物的材料		
公开(公告)号	JP2016213312A	公开(公告)日	2016-12-15
申请号	JP2015095448	申请日	2015-05-08
[标]申请(专利权)人(译)	柯尼卡株式会社		
申请(专利权)人(译)	柯尼卡美能达有限公司		
[标]发明人	田中達夫 安川則子 服部貴宗 北弘志		
发明人	田中 達夫 安川 則子 服部 貴宗 北 弘志		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 C07D409/04 C07D401/14 C07D403/10 C07D405/04 C07D401/04 C07D413/04 C07D407/04 C07D213/16 C07D213/79 C07D213/26 C07D213/30 C07D213/22 C07D217/02 C07D207/335 C07D233/58 C07D471/04 C07D471/14		
FI分类号	H05B33/14.B C09K11/06.660 C07D409/04 C07D401/14 C07D403/10 C07D405/04 C07D401/04 C07D413/04 C07D407/04 C07D213/16 C07D213/79 C07D213/26 C07D213/30 C07D213/22 C07D217/02 C07D207/335 C07D233/58 C07D471/04.103.H C07D471/14.101 C07D471/04.107.Z		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/BB03 3K107/BB04 3K107/BB06 3K107/BB07 3K107/BB08 3K107/CC12 3K107/CC22 3K107/CC27 3K107/DD64 3K107/DD67 3K107/DD70 3K107/GG06 4C034/AA02 4C055/AA01 4C055/BA02 4C055/BA08 4C055/BA13 4C055/BA16 4C055/BA29 4C055/BA57 4C055/BB04 4C055/CA01 4C055/DA01 4C063/AA01 4C063/AA03 4C063/BB01 4C063/BB08 4C063/CC12 4C063/CC23 4C063/CC41 4C063/CC42 4C063/CC52 4C063/CC76 4C063/CC94 4C063/DD08 4C063/DD12 4C063/DD23 4C063/EE10 4C065/AA03 4C065/AA04 4C065/AA18 4C065/BB04 4C065/BB05 4C065/BB09 4C065/CC03 4C065/CC09 4C065/DD02 4C065/DD03 4C065/EE02 4C065/EE03 4C065/HH01 4C065/JJ01 4C065/KK02 4C065/KK09 4C065/LL01 4C065/PP03 4C065/PP09 4C069/AC38 4C069/BA03 4C069/BB34		
其他公开文献	JP6631034B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：为了提供能够提高元件驱动期间的发光寿命和电压上升的有机电致发光元件的材料，同时抑制元件驱动之后的暗斑的发生，并且提供有机电致发光元件和有机金属络合物复合物的抗氧化作用得到改善。解决方案：在含有中性有机金属络合物的有机电致发光元件的材料中，有机金属络合物具有至少两个具有分子内氢键取代基的配位体。将配体的一个分子内氢键取代基取代成能够与构成相同金属络合物分子的其它配体的分子内氢键取代基形成氢键的位置。选择图：无

(19) 日本国特許庁 (JP)		(12) 公 開 特 許 公 報 (A)		(11) 特許出願公開番号 特開2016-213312 (P2016-213312A)	
		(43) 公開日		平成28年12月15日 (2016. 12. 15)	
(51) Int. Cl.		F I		テーマコード (参考)	
H01 L 51/50 (2006. 01)		H O 5 B 33/14		B 3 K 1 0 7	
C09 K 11/06 (2006. 01)		C09 K 11/06		6 G 0 4 C 0 3 4	
C07 D 409/04 (2006. 01)		C07 D 409/04		4 C 0 5 5	
C07 D 401/14 (2006. 01)		C07 D 401/14		4 C 0 6 3	
C07 D 403/10 (2006. 01)		C07 D 403/10		4 C 0 6 5	
		審査請求 未請求		請求項の数 10 O L (全 94 頁) 最終頁に続く	
(21) 出願番号		特願2015-95448 (P2015-95448)		(71) 出願人	
(22) 出願日		平成27年5月8日 (2015. 5. 8)		000001270 コニカミノルタ株式会社 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 110001254 特許業務法人光陽国際特許事務所	
				(74) 代理人 田中 達夫 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内	
				(72) 発明者 安川 則子 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内	
				(72) 発明者 服部 貴宗 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内	
				(72) 発明者 服部 貴宗 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内	
				最終頁に続く	
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、有機エレクトロルミネッセンス素子、及び有機金属錯体					