

(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2005-108749

(P2005-108749A)

(43) 公開日 平成17年4月21日(2005.4.21)

(51) Int.Cl.⁷

H05B 33/14

C09K 3/00

H05B 33/10

F I

H05B 33/14

C09K 3/00

C09K 3/00

H05B 33/10

テーマコード (参考)

3K007

審査請求 未請求 請求項の数 10 O L (全 18 頁)

(21) 出願番号

特願2003-343088 (P2003-343088)

(22) 出願日

平成15年10月1日 (2003. 10. 1)

(71) 出願人 000002901

ダイセル化学工業株式会社

大阪府堺市鉄砲町 1 番地

(74) 代理人 100090686

弁理士 鎌田 充生

(72) 発明者 北口 透

兵庫県神戸市灘区森後町 3 丁目 3 番 7 -

1004 号

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB17 DB03

FA01

(54) 【発明の名称】 ソース組成物及び有機エレクトロルミネッセンス素子用材料の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 レーザーを用いる分子注入法において、ソース中の機能性低分子材料の濃度に関わりなく、エネルギー吸収効率を高め、前記低分子材料をターゲットに効率よく注入する。

【解決手段】 レーザー光によりターゲットに機能性低分子材料を注入するためのソース組成物を、少なくとも前記機能性低分子材料（発光中心形成化合物など）と照射レーザー光に対する吸収域を有する吸光性高分子物質とで構成する。前記吸光性高分子物質は、高分子型紫外線吸収剤を含んでいてもよい。前記ソース組成物で構成されたソースと、レーザー光を透過可能なターゲットとを接触させ、ソース側又はターゲット側からレーザー光を照射し、前記ソース中の前記機能性低分子材料をターゲット内に注入することにより、

有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を製造する。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

レーザー光によりターゲットに機能性低分子材料を注入するためのソース組成物であって、少なくとも前記機能性低分子材料と照射レーザー光に対する吸収域を有する吸光性高分子物質とを含むソース組成物。

【請求項 2】

機能性低分子材料が発光中心形成化合物である請求項 1 記載のソース組成物。

【請求項 3】

吸光性高分子物質が、ベンゾトリアゾール単位及びベンゾフェノン単位から選択され、かつ波長 150～1600 nm に吸収域を有する単位を有しており、数平均分子量が 5000～100,000 である請求項 1 記載のソース組成物。 10

【請求項 4】

吸光性高分子物質が、高分子型紫外線吸収剤を含む請求項 1 記載のソース組成物。

【請求項 5】

吸光性高分子物質が、(ポリ)エステル系紫外線吸収剤を含む請求項 1 記載のソース組成物。

【請求項 6】

機能性低分子材料と吸光性高分子物質との割合(重量比)が、前者/後者 = 0.1/99.9～90/10 である請求項 1 記載のソース組成物。

【請求項 7】

少なくとも機能性低分子材料を含むソース(A)と、レーザー光を透過可能であるターゲット(B)とを接触させ、ソース(A)側又はターゲット(B)側からレーザー光を照射し、前記ソース(A)中の前記機能性低分子材料をターゲット(B)内に注入し、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を製造する方法であって、前記ソース(A)としてさらに吸光性高分子物質を含むソースを用いる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料の製造方法。 20

【請求項 8】

電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも 1 つの機能を有する有機高分子で構成されたターゲット(B)にフィルム状ソース(A)を接触させ、前記ソース(A)側のアブレーション閾値以下の強度のレーザー光を、前記ソース(A)側又はターゲット(B)側から照射し、少なくとも吸光性高分子物質にレーザー光を吸収させて、機能性低分子材料を前記ターゲット(B)内に注入する請求項 7 記載の製造方法。 30

【請求項 9】

請求項 7 記載の方法により得られた有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

【請求項 10】

一対の電極と、この一対の電極間に介在する請求項 9 記載のエレクトロルミネッセンス素子用材料とで構成された有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、レーザーを用いた分子注入法により、機能性低分子材料を注入して有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を製造する方法、前記分子注入法に用いられるソース組成物、前記製造方法により得られる有機エレクトロルミネッセンス用材料(有機エレクトロルミネッセンス素子用材料)、並びにこの有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。 40

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、EL素子という場合がある)は、高輝度、高効率、及び高速応答性などの点で無機EL素子に比べて優れており、近年、非常に注目されている。 50

【0003】

有機EL素子では、物理的強度の点から、素子材料として高分子化合物を用いる場合も多い。また、高分子化合物を用いた有機EL素子では、溶液塗布法により膜形成するため大面積化も可能である。しかし、溶液塗布法により形成された素子材料では、微細なパターンニング、特に多色パターンニング（フルカラー化）が困難である。

【0004】

また、多色パターンニング方法としては、カラーフィルター法や色変換法、インクジェット法（非特許文献1）、フォトリソ法などが報告されている。しかし、カラーフィルター法や色変換法では、発光層のパターンニングを必要としないという利点があるものの、フィルターを通すため変換効率が低下する。インクジェット法においては、インクジェットにより形成されたパターンは、中心が高くなる円錐型であり、表面の平滑性に劣るため、均一に電極を形成するのが困難である。また、断面パターンは四角形が理想とされるが、インクジェット法では円形となる。さらに、パターンの大きさが、乾燥条件や溶液の濃度に大きく依存する。フォトリソ法では、UV酸化により蛍光を失う特殊な発光中心化合物のみが使用可能であり、表現できる色が制限される。

10

【0005】

このように、従来の溶液塗布による製膜法では、物理的強度の高い高分子化合物の使用が可能であるが、微細なパターンニングが困難である。また、上記のパターンニング方法においても、使用できる化合物が制限されるばかりか、有機EL素子に適した表面平滑性を備えたフィルムを得ることができない。

20

【0006】

一方、微細なパターンニングを得るため、分子注入法により有機EL素子材料を製造する方法が検討されている。例えば、機能性低分子材料又は機能性低分子材料を含む固体材料（A）と機能性成分が注入される固体材料（B）とを対置させ、パルスレーザーを照射することにより、機能性成分を固体材料（B）に注入する方法が知られている（特許文献1）。また、有機高分子化合物中にパルスレーザー光を吸収し得る色素が分散されたソースフィルムと、パルスレーザーが透過し得る有機高分子化合物からなるターゲットフィルムとを密着させて、ソースフィルムのアブレーション閾値以下の強度でパルスレーザー光をターゲットフィルム側から照射して色素をターゲットフィルム内に注入する方法も知られている（特許文献2）。この文献には、分子注入法が表示用カラーフィルターの作製などに利用できることが記載されている。しかし、これらの方法では、色素の注入効率が低く、パターンの鮮明性が不十分である。

30

【0007】

また、ナイルレッドやクマリンなどの発光中心形成化合物と被膜形成性有機高分子とで構成されたソースを、ターゲットと接触させて、ソース又はターゲット側からレーザー光を照射し、前記発光中心形成化合物をターゲット内に注入する方法が知られている（特許文献3）。この方法でも、ターゲットに注入される発光中心形成化合物自体にレーザー光を吸収させる必要があり、色素の注入効率が低い。そのため、色素の注入濃度が低下し、パターンの鮮明性を改善できない。

40

【0008】

なお、ベンゾトリアゾリルヒドロキシフェニル基を有するアルコールとラクトン類との開環付加重合体、及びビス〔3-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）-4-ヒドロキシベンゼンエタノール〕メタンとラクトン類との開環付加重合体は紫外線吸収剤として知られている（特許文献4及び5）。

【特許文献1】特開平6-297457号公報（特許請求の範囲）

【特許文献2】特開平8-106006号公報（特許請求の範囲）

【特許文献3】特開2000-150158号公報（請求項1、段落番号[0018]及び[0021]）

【特許文献4】特開平10-265556号公報（特許請求の範囲、段落番号[0016]）

【特許文献5】特開平10-265557号公報（特許請求の範囲、段落番号[0015]）

50

【非特許文献1】Appl. Phys. Lett. 72, 5 (1998) p. 519

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

従って、本発明の目的は、レーザーを用いる分子注入法において、ソース中の機能性低分子材料（発光中心形成化合物など）の濃度に関わりなく、エネルギー吸収効率を高め、機能性低分子材料をターゲット内に効率よく注入できるソース組成物、及びこのソース組成物を用いる有機EL素子材料の製造方法を提供することにある。

【0010】

本発明の他の目的は、ソースを構成するバインダーポリマーとの相溶性が改善され、ターゲット内に、機能性低分子材料を選択的に効率よく注入可能なソース組成物及び有機EL素子材料の製造方法を提供することにある。

【0011】

本発明のさらに他の目的は、微細パターニングが可能なソース組成物、及び有機EL素子材料の製造方法を提供することにある。

【0012】

本発明の別の目的は、表面平滑性及び電極との接触性に優れる有機EL素子用材料及びそれを用いた有機EL素子を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0013】

本発明者らは、前記課題を達成するため鋭意検討の結果、レーザーを用いた分子注入法において、機能性低分子材料（発光中心形成化合物など）と共に吸光性高分子物質を含むソースを用いると、ソースの吸光係数を機能性低分子材料の濃度とは独立して調整することができ、レーザー光のエネルギーを有効利用して、効率よく機能性低分子材料をターゲット内に注入できること、高分子物質を用いる場合であっても、このような方法により微細パターニングが可能であることを見だし、本発明を完成した。

【0014】

すなわち、本発明のソース組成物は、レーザー光によりターゲットに機能性低分子材料を注入するためのソース組成物であって、少なくとも前記機能性低分子材料と照射レーザー光に対する吸収域を有する吸光性高分子物質とを含んでいる。前記機能性低分子材料は発光中心形成化合物であってもよい。前記吸光性高分子物質は、ベンゾトリアゾール単位及びベンゾフェノン単位から選択され、かつ波長150～1600nmに吸収域を有する単位を有していてもよく、数平均分子量が500～100,000程度であってもよい。吸光性高分子物質は、高分子型紫外線吸収剤を含んでいてもよい。

【0015】

本発明には、少なくとも機能性低分子材料を含むソース（A）と、レーザー光を透過可能であるターゲット（B）とを接触させ、ソース（A）側又はターゲット（B）側からレーザー光を照射し、前記ソース（A）中の前記機能性低分子材料をターゲット（B）内に注入し、有機エレクトロルミネッセンス用材料（有機エレクトロルミネッセンス素子用材料）を製造する方法であって、前記ソース（A）としてさらに吸光性高分子物質を含むソースを用いる有機エレクトロルミネッセンス用材料の製造方法も含まれる。前記製造方法において、電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1つの機能を有する有機高分子で構成されたターゲット（B）にフィルム状ソース（A）を接触させ、前記ソース（A）側のアブレーション閾値以下の強度のレーザー光を、前記ソース（A）側又はターゲット（B）側から照射し、少なくとも吸光性高分子物質にレーザー光を吸収させて、機能性低分子材料を前記ターゲット（B）内に注入してもよい。

【0016】

本発明には、前記製造方法により得られた有機エレクトロルミネッセンス用材料、及び一対の電極と、この一対の電極間に介在する前記エレクトロルミネッセンス用材料とで構成された有機エレクトロルミネッセンス素子も含まれる。

10

20

30

40

50

【発明の効果】

【0017】

本発明では、レーザーを用いる分子注入法において、ソースを形成するソース組成物に吸光性高分子物質を含有させるので、ソース中の機能性低分子材料（発光中心形成化合物など）の濃度に関わりなく、エネルギー吸収効率を高めることができる。また、ソースを構成するバインダーポリマーとの相溶性を改善でき、ターゲット内に、機能性低分子材料を選択的に効率よく注入することができる。さらに、パターンを微細化できるとともに、有機EL素子材料の表面平滑性及び電極との接触性を改善できる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0018】

本発明では、少なくとも機能性低分子材料を含むソース（A）と、レーザー光を透過可能であるターゲット（B）とを接触させ、ソース（A）側又はターゲット（B）側からレーザー光を照射し、前記ソース（A）中の機能性低分子材料をターゲット（B）内に注入し、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を製造する。前記ソース（A）およびターゲット（B）の形態は、特に制限されないが、通常、フィルムの形態で使用される。

【0019】

[ソース（A）]

ソース（A）は、少なくとも機能性低分子材料と吸光性高分子物質とを含有するソース組成物で構成されている。

【0020】

（ソース組成物）

ソース組成物は、レーザー光によりターゲットに機能性低分子材料を注入するための組成物であり、このようなソース組成物も本発明に含まれる。なお、ソース組成物は、通常、前記機能性低分子材料と、吸光性高分子物質と、ソースの皮膜形成性を向上させるために用いるバインダー樹脂とで構成する場合が多い。

【0021】

（機能性低分子材料）

機能性低分子材料としては、レーザー光によりターゲットに注入可能であるとともに、通常、比較的分子量（例えば、数平均分子量150～1,000（好ましくは200～600）程度）の材料が使用される。機能性低分子材料は、ターゲットに注入するために用いるレーザー光を吸収可能であってもよいが、本発明では、機能性低分子材料のレーザー光に対する吸収能が低くても、吸光性高分子物質の吸収エネルギーを利用して効率よく注入できる。また、機能性低分子材料は、必要によりエネルギー授受により発光可能な発光性化合物、導電性化合物、光導電性化合物などであってもよい。機能性低分子材料は、通常、有機EL素子材料において、発光中心を形成する発光中心形成化合物であるのが好ましい。

【0022】

このような発光中心形成化合物としては、慣用の発光中心形成化合物、例えば、置換基（ハロゲン原子、 C_{1-4} アルキル基、 C_{1-4} アルコキシ基、カルボニル基、アミノ基、ジアルキルアミノ基、シアノ基など）を有していてもよい縮合複素環化合物〔O、N及びS原子から選択された少なくとも1種のヘテロ原子を含む複素環化合物、例えば、2,5-ビス（5-*tert*-ブチル-2-ベンゾオキサゾイル）-チオフェン類；ナイルレッド、クマリン類（クマリン6、クマリン7、水添キノリジン環や2,2,8,8-テトラメチル-水添キノリジン環が縮合したクマリンなど）；4-（ジシアノメチレン）-2-メチル-6-（*p*-ジメチルアミノスチリル）-4*H*-ピラン、キナクリドン類（ジメチルキナクリドン、ジエチルキナクリドンなど）など〕；ルブレン、ピレン、クリセン、ペリレン、コロネンなどの置換基（ハロゲン原子、 C_{1-4} アルキル基、 C_{1-4} アルコキシ基、カルボニル基、アミノ基、ジアルキルアミノ基、シアノ基など）を有していてもよい縮合多環式炭化水素；1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン（TPB）、1-（*p*-アミノフェニル）-1,4,4-トリフェニルブタジエン、1,1-ビス

10

20

30

40

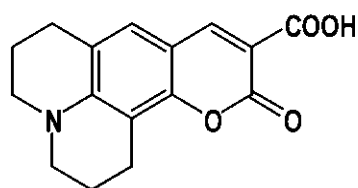
50

(p-アミノフェニル)-4, 4-ジフェニルブタジエンなどのアミノ基などの置換基を有していてもよいジないしテトラアリールブタジエン類；1, 4-ビス(2-(4-エチルフェニル)エチニル)ベンゼンなどのビス(2-(4-C₁₋₄アルキルフェニル)C₂₋₄アルキニル)ベンゼン；4, 4'-ビス(2-フェニルビニル)ビフェニルなどのビス(2-C₆₋₁₂アリールビニル)ビフェニルなどが挙げられる。これらの化合物は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。なお、ナイルレッドの発光波長は、580 nm(赤色発光)、クマリン6の発光波長は490 nm(緑色発光)である。前記水添キノリジン環が縮合したクマリン及び2, 2, 8, 8-テトラメチルー水添キノリジン環が縮合したクマリンは、それぞれ下記式(a)及び(b)で表すことができ、後者(b)は、商品名「NKX 1645」として林原生物学研究所などから入手可能である。

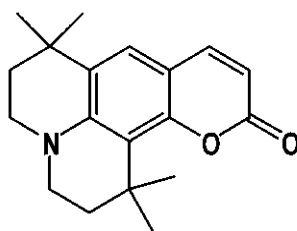
10

【0023】

【化1】



(a)



(b)

20

【0024】

ソース(A)(又はソース組成物)中に含まれる機能性低分子材料の割合は、特に制限されないが、例えば、ソース組成物全体に対して、0.1~30重量%、好ましくは1~25重量%、さらに好ましくは3~20重量%程度である。

【0025】

(照射レーザー光に対する吸収域を有する吸光性高分子物質)

吸光性高分子物質としては、レーザー光吸収ユニット(又はレーザー光吸収基)を有する種々の高分子物質が使用でき、通常、少なくとも前記レーザー光吸収ユニットが、照射レーザー光に対する吸収域を有していてもよい。高分子物質は、機能性低分子材料及びバインダー樹脂に対して相溶性であるのが好ましい。

30

【0026】

前記レーザー光吸収ユニットとしては、特に制限されず、使用するレーザー光源の波長(発振波長)に応じて、この発振波長、例えば、紫外線、可視光線、近赤外線などの波長域に吸収を有する化合物ユニット(単位)[慣用の紫外線吸収剤に由来する紫外光吸収ユニットや、可視光又は近赤外吸収色素に由来する可視光又は近赤外光吸収ユニットなど]をレーザー光吸収ユニットとして使用できる。このようなレーザー光吸収ユニットは、例えば、波長150~1600 nm、好ましくは200~1200 nm、さらに好ましくは300~1000 nm程度に吸収域を有していてもよい。

【0027】

好ましい高分子物質としては、慣用の紫外線吸収剤に由来する単位(紫外線吸収ユニット)をレーザー光吸収ユニットとして有する高分子物質、特に高分子型紫外線吸収剤が挙げられる。紫外線吸収剤に由来する単位は、例えば、ケイ皮酸単位、アミノ安息香酸単位、サリチル酸単位、ジベンゾイル単位などであってもよいが、通常、ベンゾトリアゾール単位及びベンゾフェノン単位から選択された少なくとも一種が好ましい。

40

【0028】

前記レーザー光吸収ユニットに対応する化合物(紫外線吸収剤など)は、通常、ヒドロキシル基やカルボキシル基などの反応性基を有している。このような紫外線吸収剤のうち、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤としては、N-2-ヒドロキシフェニルベンゾトリアゾール、N-2, 5-ジヒドロキシフェニルベンゾトリアゾールなどのアリール基に置

50

換基を有していてもよいN-（モノ乃至トリヒドロキシC₆₋₁₀アリール）-ベンゾトリアゾール；ビスベンゾトリアゾリル-モノ乃至トリヒドロキシ-ビスアリール類、例えば、N-（2，2'-ジヒドロキシビフェニル）ベンゾトリアゾール、ビス（3-ベンゾトリアゾリル-2-ヒドロキシフェニル）メタン、ビス（3-ベンゾトリアゾリル-1，4-ジヒドロキシフェニル）メタンなどのビス（ベンゾトリアゾリル-ヒドロキシ-C₆₋₁₀アリール）C₁₋₁₀アルカンなどの他、これらのヒドロキシル基含有化合物に対するカルボキシル基含有化合物などが挙げられる。

【0029】

ベンゾフェノン系紫外線吸収剤としては、2-ヒドロキシベンゾフェノン、2，4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシフェニルフェニルケトン、3-ベンゾイル-4-ヒドロキシ-6-メトキシベンゼンスルホン酸などのベンゼン環に置換基を有していてもよいモノ乃至トリヒドロキシベンゾフェノンの他、これらのヒドロキシベンゾフェノンに対応するモノ乃至トリカルボキシベンゾフェノンなどが挙げられる。

10

【0030】

これらの紫外線吸収剤は、この紫外線吸収剤を構成するアリール基又はベンゼン環上に1つ又は複数の置換基を有していてもよい。このような置換基としては、メチル基などの直鎖又は分岐C₁₋₆アルキル基；メトキシ基などのC₁₋₆アルコキシ基；フェニル基などのC₆₋₁₀アリール基；トリル基などのC₁₋₄アルキルC₆₋₁₀アリール基；ヒドロキシフェニル基などのヒドロキシC₆₋₁₀アリール基；スルホ基；アミノ基、イソシアネート基などが挙げられる。

20

【0031】

吸光性高分子物質は、レーザー光照射により、ターゲット内に移動するのを防ぐため、前記機能性低分子材料に比べ、比較的高分子量であるのが好ましい。また、比較的高分子量の化合物（紫外線吸収剤など）を用いると、ソース組成物のバインダー樹脂との相溶性を高めることもできる。このような高分子物質の数平均分子量は、使用する機能性低分子材料の種類に応じて、例えば、500～100,000、好ましくは600～90,000、さらに好ましくは700～80,000程度から選択できる。また、ゲルパミエーションクロマトグラフィーにより測定した前記高分子物質の数平均分子量は、ポリスチレン換算で、例えば、500～50,000、好ましくは600～30,000、さらに好ましくは700～10,000（例えば、700～5,000）程度であってもよい。

30

【0032】

このような高分子物質は、前記レーザー光吸収ユニットに対応する化合物（前記紫外線吸収剤など）が有する反応性基を利用して、この反応性基に対して反応性を有する官能基を有する化合物との反応により高分子量化することにより得ることができる。このような官能基を有する化合物としては、通常、反応性の官能基を有するポリマー、プレポリマー又はオリゴマー、例えば、末端ヒドロキシル基及び／又は末端カルボキシル基を有するポリエステル、末端ヒドロキシル基及び／又は末端イソシアネート基を有するポリウレタン、末端カルボキシル基及び／又は末端アミノ基を有するポリアミドなどが挙げられる。

【0033】

吸光性高分子物質のうち、特に（ポリ）エステル系化合物（ポリエステル系紫外線吸収剤など）が好ましい。前記（ポリ）エステル系化合物は、ジカルボン酸（コハク酸、アジピン酸などのC₃₋₁₀脂肪族ジカルボン酸；フタル酸、テレフタル酸などの芳香族ジカルボン酸など）やジオール（エチレングリコール、プロピレングリコール、1，4-ブタンジオールなどのC₂₋₁₀アルカンジオールなど）などを用いて得られるポリエステルであってもよいが、好ましくは反応性基を有するレーザー光を吸収可能な化合物（反応性基を有する紫外線吸収剤など）と、ラクトンやオキシカルボン酸（特に、ラクトン）との反応により得られる（ポリ）エステル化合物であってもよい。なお、ラクトンとヒドロキシカルボン酸とを併用してもよく、さらにジカルボン酸及び／又はジオールを、ラクトン及び／又はヒドロキシカルボン酸とともに用いてもよい。

40

【0034】

50

前記ラクトンとしては、アルキル基（メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、*t*-ブチル基などの直鎖又は分岐 C_{1-10} アルキル基など）などの置換基を有していてもよい C_{3-18} ラクトン、例えば、 β -ラクトン類（プロピオラクトン、ジメチルプロピオラクトンなど）、 γ -ラクトン類（ γ -ブチロラクトン、 γ -カプロラクトン、 γ -カプリロラクトン、 γ -ラウロラクトン、 γ -パルミトラクトン、 γ -ステアロラクトンなど）、 δ -ラクトン類（ δ -バレロラクトン、 δ -カプロラクトンなど）、 ε -ラクトン類（ ε -カプロラクトン、トリメチルー ε -カプロラクトン、モノメチルー ε -カプロラクトンなどの ε -カプロラクトン類など）などが挙げられる。オキシカルボン酸としては、脂肪族オキシカルボン酸〔グリコール酸、乳酸、ヒドロアクリル酸、 α -オキシ酪酸、 γ -オキシ酪酸、 β -オキシ吉草酸、グリセリン酸、タルトロン酸、リンゴ酸、酒石酸、クエン酸、マンデル酸、トロパ酸などの C_{6-10} アリール基（フェニル基など）などの置換基を有していてもよい C_{2-18} 脂肪族オキシカルボン酸など〕、芳香族オキシカルボン酸〔ハロゲン原子及び／又はアルキル基などの置換基を有していてもよいヒドロキシ安息香酸（サリチル酸、*m*-又は*p*-ヒドロキシ安息香酸、没食子酸などのモノ乃至トリヒドロキシ安息香酸など）、ヒドロキシナフトエ酸などのモノ乃至テトラヒドロキシ- C_{6-10} 芳香族モノ乃至トリカルボン酸などが挙げられる。これらのラクトン及びヒドロキシカルボン酸は、それぞれ単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

10

【0035】

ラクトン及びヒドロキシカルボン酸としては、直鎖又は分岐 C_{1-6} アルキル基などの置換基を有していてもよい C_{3-12} ラクトン（特に C_{3-8} ラクトン）、 C_{2-10} 脂肪族オキシカルボン酸などを用いる場合が多い。

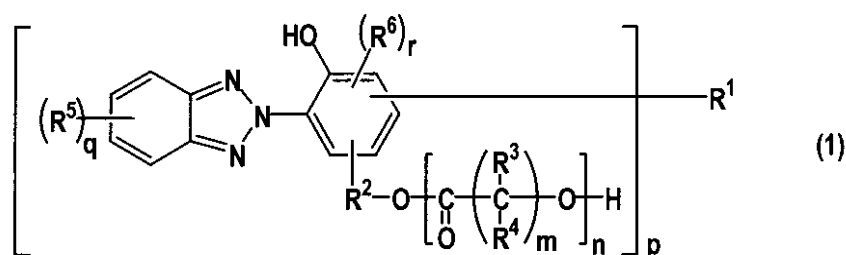
20

【0036】

吸光性（ポリ）エステル化合物としては、例えば、下記式(1)で表される化合物が挙げられる。

【0037】

【化2】



30

【0038】

（式中、 R^1 は水素原子、直接結合又はアルキレン基を示し、 R^2 はアルキレン基を示し、 R^3 及び R^4 は同一又は異なって、水素原子又はアルキル基を示し、 R^5 及び R^6 はそれぞれ置換基を示す。 m 及び n は同一又は異なって、1以上の整数を示し、 p は1又は2である。 p が1の場合、 R^1 は水素原子であり、 p が2の場合、 R^1 は直接結合又はアルキレン基である。 q は0～4の整数を示し、 r は0～2の整数を示す）

40

R^1 及び R^2 で表されるアルキレン基としては、メチレン、エチレン、プロピレン基などの直鎖又は分岐 C_{1-10} アルキレン基が挙げられる。前記式(1)において、基 R^2 の置換位置は、特に制限されず、ベンゼン環上のヒドロキシル基に対して、*o*-又は*m*-位であってもよいが、通常、*p*-位が好ましい。

【0039】

R^3 及び R^4 で表されるアルキル基としては、メチル、エチル、ブチル、*t*-ブチル基などの直鎖又は分岐 C_{1-10} アルキル基が挙げられる。

【0040】

R^5 で表される置換基としては、ハロゲン原子（F、Cl、Br及びI原子など）、及びアルキル基（前記 R^3 及び R^4 の項で例示のアルキル基など）などが挙げられる。 R^5 の

50

置換位置は、ベンゾトリアゾール環の 5 乃至 8 位のいずれであってもよく、好ましくは 5 位及び 8 位、さらに好ましくは 5 位であってもよい。

【0041】

R^6 で表わされる置換基としては、ヒドロキシ基、アルキル基（メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、*t*-ブチル基などの直鎖又は分岐 C_{1-10} アルキル基など）、ヒドロキシアルキル基（ヒドロキシエチル基などのヒドロキシ C_{1-10} アルキル基など）などが挙げられる。 R^6 の置換位置は、特に制限されず、ベンゼン環上のヒドロキシ基に対して、*o*-、*m*-又は *p*-位のいずれであってもよい。前記置換位置は、好ましくは *o*-及び／又は *m*-位、さらに好ましくは *o*-位であってもよい。

【0042】

前記式(1)において、*m* は前記例示のラクトン又はヒドロキシカルボン酸に対応し、ラクトン又はヒドロキシカルボン酸の炭素数より 1 少ない整数を示す。*m* は、好ましくは 2 ～ 12、さらに好ましくは 3 ～ 10、特に 4 ～ 8（例えば、4 ～ 6）の整数を示す。

【0043】

n は、前記機能性低分子材料の分子量に応じて、適宜選択でき、例えば、1 ～ 100、好ましくは 5 ～ 80、さらに好ましくは 10 ～ 50（例えば、10 ～ 30）の整数であってもよく、また、1 ～ 20（例えば、10 ～ 20）の整数であってもよい。

【0044】

q は、好ましくは 0 ～ 3、さらに好ましくは 0 ～ 2 の整数、特に 0 又は 1 であってもよい。*r* は、好ましくは 0 又は 1 である。

【0045】

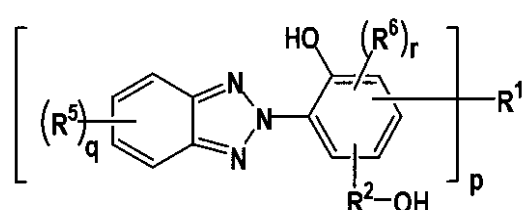
前記式(1)において、 R^1 は好ましくは水素原子又は C_{1-4} アルキレン基であり、 R^2 は好ましくは直鎖 C_{1-6} アルキレン基であり、 R^3 及び R^4 は好ましくは水素原子又は C_{1-4} アルキル基であってもよい。また、 R^5 は好ましくは水素原子、塩素原子又は直鎖又は分岐 C_{1-4} アルキル基であり、 R^6 は直鎖又は分岐 C_{1-6} アルキル基であってもよい。さらに、 $R^1 \sim R^6$ 、及び *m* 乃至 *r* の好ましい組み合わせとしては、*m* は 5 ～ 50、*n* は 4 ～ 6 の整数であり、 R^1 が水素原子（すなわち *p* が 1）、 R^2 が C_{1-4} 直鎖アルキレン基、 R^3 及び R^4 が水素原子、 R^5 が塩素原子又は C_{1-4} アルキル基、*q* が 0 又は 1、 R^6 が分岐 C_{1-4} アルキル基、*r* が 0 又は 1 である。

【0046】

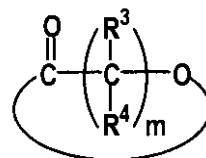
前記式(1)の（ポリ）エステル系紫外線吸収剤は、例えば、下記式(2)で表されるアルコール化合物に、このアルコール化合物 1 モルに対して *n* モルの下記式(3)で表されるラクトン類を開環付加重合させることにより得ることができる。

【0047】

【化 3】



(2)



(3)

【0048】

（式中、 $R^1 \sim R^6$ 、*m*、*p*、*q* 及び *r* は前記に同じ）

前記式(2)で表されるアルコール化合物としては、例えば、ベンゾトリアゾール環の 5 位にハロゲン原子や C_{1-4} アルキル基などの置換基を有していてもよい 3-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）-4-ヒドロキシベンゼン C_{1-4} アルキルアルコール、例えば、3-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）-4-ヒドロキシベンゼンエタノール、ベンゾトリアゾール 3-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）-5-分岐 C_{1-4}

10

20

30

40

50

C_{1-4} アルキル-4-ヒドロキシ-ベンゼン C_{1-4} アルキルアルコール [ベンゾトリアゾール 3- (5-クロロ-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル) -5- (1, 1-ジメチルエチル) -4-ヒドロキシ-ベンゼンプロパノール、3- (2H-ベンゾトリアゾール-2-イル) -4-ヒドロキシ-ベンゼンエタノール、3- (5-メチル-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル) -5- (1-メチルエチル) -4-ヒドロキシ-ベンゼンプロパノールなど] ; ベンゾトリアゾール環の5位にハロゲン原子や C_{1-4} アルキル基などの置換基を有していてもよいビス [3- (2H-ベンゾトリアゾール-2-イル) -4-ヒドロキシ-ベンゼンエタノール] メタンなどのビス [3- (2H-ベンゾトリアゾール-2-イル) -4-ヒドロキシ-ベンゼン C_{1-4} アルキルアルコール] 直鎖又は分岐 C_{1-4} アルカンなどが挙げられる。これらのアルコールは、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。アルコール化合物は、例えば、対応するエステル化合物（エステル基を有する市販のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤など）をリチウムアルミニウムハイドライドなどの還元剤で還元することにより合成してもよい。なお、3- (2H-ベンゾトリアゾール-2-イル) -4-ヒドロキシ-ベンゼンエタノールは、商品名「J F-269」として城北化学（株）から、また、ビス [3- (2H-ベンゾトリアゾール-2-イル) -4-ヒドロキシ-ベンゼンエタノール] メタンは、商品名「M B E P」として大塚化学（株）から、それぞれ入手可能である。

10

【0049】

前記式(3)で表されるラクトンとしては、前記例示のラクトン（特に C_{4-8} ラクトン）が挙げられる。また、前記ラクトンは、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

20

【0050】

前記アルコール化合物とラクトンとの反応は、チタン触媒（テトラアルキルチタネートなど）やスズ触媒（スズ脂肪酸塩、ハロゲン化第一スズなど）などの触媒の存在下で行うことができる。前記反応の詳細は、例えば、特開平10-265556号公報及び特開平10-265557号公報などを参照できる。

【0051】

ソース組成物において、吸光性高分子物質は、単独で又は二種以上組合せて使用できる。

【0052】

吸光性高分子物質は、ソース組成物を構成するバインダー樹脂として用いてもよい。吸光性高分子物質の割合は、特に制限されず、ソース組成物全体に対して、1~99.9重量%、好ましくは5~90重量%、さらに好ましくは10~80重量%（例えば、20~70重量%）程度であってもよい。

30

【0053】

また、機能性低分子材料と吸光性高分子物質との割合（重量比）は、前者/後者=0.1/99.9~90/10、好ましくは1/99~80/20、さらに好ましくは5/95~70/30程度であってもよい。

【0054】

（バインダー樹脂）

バインダー樹脂としては、熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂（例えば、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、熱硬化性アクリル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、ジアリルフタレート樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂など）などの有機高分子が挙げられる。前記バインダー樹脂としては、通常、被膜形成能を有する樹脂が使用できる。

40

【0055】

前記熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体、ポリブテンなどのオレフィン系樹脂；ポリスチレン、アクリロニトリル-スチレン共重合体、ゴム成分がグラフトしたスチレン系樹脂（ゴム変性ポリスチレン（HIPS）、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体など）などのスチレン系樹脂；アクリル系樹脂 [ポリメチルメタクリレート、メチル（メタ）アクリレート-アクリル酸アルキルエステル、アルキル（メタ）アクリレートとノルボルニル基などの脂環族

50

基を有する（メタ）アクリレート（ノルボルニル（メタ）アクリレートなど）との共重合体などの（メタ）アクリレート系単量体の単独または共重合体；メチルメタクリレート－スチレン共重合体などの（メタ）アクリレート系単量体と共重合性単量体との共重合体；ポリアクリロニトリルなど]；ポリビニルアルコール、エチレン－ビニルアルコール共重合体などのビニルアルコール系重合体；ハロゲン含有ビニル系樹脂（ポリ塩化ビニル、塩化ビニル－酢酸ビニル共重合体、ポリ塩化ビニリデン、フッ素系樹脂）；カルボン酸ビニルエステル系樹脂（ポリ酢酸ビニル、エチレン－酢酸ビニル共重合体など）；6－ナイロン、6，6－ナイロン、6，10－ナイロン、6，12－ナイロンなどのポリアミド系樹脂；ポリエステル系樹脂〔ポリアルキレンテレフタレート（ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートなど）、ポリアルキレンナフタレートなどのアルキレンアリーレートのホモ又はコポリエステル、他の共重合性単量体とのコポリエステルなど〕；ポリカーボネート；ポリアセタール；ポリフェニレンエーテル；ポリフェニレンスルフィド；ポリエーテルスルホン；ポリエーテルケトン；熱可塑性ポリイミド；熱可塑性ポリウレタンなどが挙げられる。

10

【0056】

これらの高分子化合物は、単独で又は二種以上組合わせて使用してもよい。

【0057】

ソース組成物において、機能性低分子材料及び吸光性高分子物質の残部を、バインダー樹脂で構成でき、通常、これらの三成分の総量を100%とする。

20

【0058】

[ターゲット（B）]

ターゲットは、レーザー光が透過可能であれば特に制限されないが、通常、電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1つの機能を有している。このようなターゲットとしては、例えば、(I)電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1つの機能を有する樹脂（有機高分子）、又は(II)電子輸送機能及びホール輸送機能を備えていないベース樹脂と、電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも一種の機能を有する化合物（低分子化合物）とを含む機能性樹脂組成物が挙げられる。なお、前記樹脂(I)及び樹脂組成物(II)のベース樹脂としては、皮膜形成能を有する樹脂（有機高分子）が好ましい。

30

【0059】

樹脂(I)としては、例えば、ポリフェニレンビニレン、ポリ2，5－ジメトキシフェニレンビニレン、ポリナフタレンビニレンなどのポリフェニレンビニレン類；ポリパラフェニレン、ポリ2，5－ジメトキシパラフェニレンなどのポリフェニレン類（特に、ポリパラフェニレン類）；ポリ（3－アルキルチオフェン）などのポリアルキルチオフェン類、ポリ（3－シクロヘキシルチオフェン）などのポリシクロアルキルチオフェン類、ポリ（3－（4－n－ヘキシルフェニル）チオフェン）などのポリアリールチオフェン類；ポリアルキルフルオレンなどのポリフルオレン類；主鎖又は側鎖にホール輸送機能基及び電子輸送機能基から選択された少なくとも1種の機能基を有するビニル系重合体〔例えば、ポリ－N－ビニルカルバゾール（PVK）、ポリ－4－N，N－ジフェニルアミノスチレン、ポリ（N－（p－ジフェニルアミノ）フェニルメタクリルアミド）、ポリ（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’－ジアミノメタクリルアミド）（PTPDMA）、ポリ－4－（5－ナフチル－1，3，4－オキサジアゾール）スチレンなど〕；ポリメチルフェニルシラン；芳香族アミン誘導体を側鎖又は主鎖に有する重合体；又はこれらの共重合体などが挙げられる。これらの樹脂は、単独で又は二種以上組み合わせて使用してもよい。ターゲットとしては、ホール輸送機能を有するポリ－N－ビニルカルバゾール又はN－ビニルカルバゾールを主成分として含む共重合体、及び芳香族アミン誘導体などを用いる場合が多い。

40

【0060】

PVKは、非晶質で、耐熱性に優れている（ガラス転移温度 T_g ：224℃）。上記PVKの重合度は、特に制限されないが、例えば、200～200000、好ましくは50

50

0～50000程度である。

【0061】

前記樹脂(I)は、電子輸送機能及び／又はホール輸送機能を有する化合物（低分子化合物）と組み合わせて用いてもよい。

【0062】

電子輸送機能を有する化合物としては、例えば、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBD)、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール(BND)、1,3-ビス[5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール]ベンゼン(BPOB)、1,3,5-トリリス[5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール]ベンゼン(TPOB)、1,3,5-トリリス[5-(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール]ベンゼン(TNOB)などのオキサジアゾール誘導体；3,5,3',5'-テトラキス-tert-ブチルジフェノキノンなどのジフェノキノン類；1,2,3,4,5-ペンタフェニル-1,3-シクロペンタジエン(PPCP)などのシクロペンタジエン類；トリリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)錯体、ビス(ベンゾキノリノラト)ベリリウム錯体、トリリス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリノラト)ベリリウム錯体などのキノリノラト錯体が挙げられる。これらの電子輸送機能を有する化合物は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。これらの化合物のうち、オキサジアゾール誘導体を用いる場合が多い。

10

【0063】

ホール輸送機能を有する化合物としては、例えば、芳香族第3級アミン[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)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(1-ナフチル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(NPD)、N,N,N',N'-テトラ(3-メチルフェニル)-1,3-ジアミノベンゼン(PDA)などのN,N,N',N'-テトラC₆₋₁₄アリール-C₆₋₁₂アリーレンジアミン；1,1-ビス[ジ(4-トリルアミノ)フェニル]シクロヘキサンなどのビス[(N,N-ジC₆₋₁₂アリールアミノ)C₆₋₁₀アリール]C₅₋₈シクロアルカン；4,4',4"-トリリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(m-MTDATA)、4,4',4"-トリリス(1-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(1-TNATA)、4,4',4"-トリリス(2-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(2-TNATA)、4,4',4"-トリ(4-N-カルバゾリル)トリフェニルアミン(TCTA)、1,3,5-トリリス[4-(3-メチルフェニルフェニルアミノ)フェニル]ベンゼン(m-MTDAPB)などのトリリス(N-C₆₋₁₂アリールアミノC₆₋₁₂アリール)アミン；トリフェニルアミン、N,N-ジフェニル-N-ビフェニルアミン、N,N-ジフェニル-N-ターフェニルアミン、N,N,N-トリリス(ターフェニルアミン)(p-TTA)などのトリアリールアミン類など]などが挙げられる。

20

30

【0064】

これらのホール輸送機能を有する化合物及び電子輸送機能を有する化合物は、単独で又は二種以上組み合わせて使用してもよい。なお、これらの化合物は、発光中心形成化合物として使用してもよい。

40

【0065】

樹脂(I)（例えば、PVK）とホール及び／又は電子輸送機能を有する化合物とを組み合わせる場合、前記化合物の割合は、有機EL素子用材料としての機能を損なわない範囲で選択でき、例えば、樹脂(I)100重量部に対して、10～300重量部、好ましくは20～200重量部、さらに好ましくは30～180重量部程度である。

【0066】

樹脂(I)と前記機能を有する低分子化合物とを組み合わせると、有機EL素子を単層構造とすることもでき、発光効率が向上するだけでなく、経済的にも有利である。

【0067】

50

なお、樹脂(I)は、ホール輸送機能及び電子輸送機能のいずれも有しない樹脂（例えば、前記ソースの項で例示の有機高分子など）と組み合わせて用いてもよい。また、樹脂(I)と、前記機能を有する低分子化合物と、ホール輸送機能及び電子輸送機能のいずれも有しない樹脂とを組み合わせて用いてもよい。

【0068】

前記樹脂組成物(II)において、ベース樹脂としては、特に制限されず、例えば前記ソースの項で例示した種々の有機高分子（熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂など）が使用でき、通常、皮膜形成能を有する樹脂が使用できる。前記ベース樹脂には、電子輸送機能及びホール輸送機能のうち少なくとも1つの機能を有する化合物（低分子化合物）を添加することにより、前記機能を付与できる。前記低分子化合物としては、樹脂(I)と組み合わせて使用可能な低分子化合物と同様の化合物が使用できる。

10

【0069】

樹脂組成物(II)において、電子輸送機能及び／又はホール輸送機能を有する低分子化合物の割合は、ベース樹脂100重量部に対して、10～300重量部、好ましくは20～200重量部、さらに好ましくは30～180重量部程度である。

【0070】

〔有機EL素子用材料の製造方法（分子注入法）〕

本発明の有機EL素子用材料は、ソース(A)と、ターゲット(B)とを接触させ、ソース(A)側又はターゲット(B)側からレーザー光を照射し、ソース(A)中の機能性低分子材料をターゲット(B)内に注入することにより製造できる。前記ソース(A)は、少なくとも機能性低分子材料及び照射レーザーに対する吸収域を有する吸光性高分子物質を含んでいる。そのため、電子輸送機能及びホール輸送機能から選択された少なくとも1つの機能を有する有機高分子で構成されたターゲット(B)にフィルム状ソース(A)を接触させ、前記ソース(A)側のアブレーション閾値以下の強度のレーザー光を、前記ソース(A)側又はターゲット(B)側から照射し、少なくとも吸光性高分子物質にレーザー光を吸収させて、機能性低分子材料を前記ターゲット(B)内に注入することもできる。

20

【0071】

本発明に使用されるレーザー光としては、使用する機能性低分子材料の種類によって異なるが、例えば、波長190～1100nmの範囲に発振波長を有するレーザー光が挙げられる。パルスレーザー光を使用した場合、周波数は、0.5～50Hz、好ましくは0.5～30Hz程度である。また、パルス幅は、レーザー光の波長などによって異なるが、10ps～10μs、好ましくは10ps～100ns程度である。パルス幅が短いほど、機能性低分子材料の分解などを抑制でき、損傷を受け難い。

30

【0072】

レーザー光源としては、例えば、ArFエキシマーレーザー(193nm)、KrFエキシマーレーザー(248nm)、XeClエキシマーレーザー(308nm)、XeFエキシマーレーザー(351nm)、窒素レーザー(337nm)、色素レーザー(窒素レーザー、エキシマーレーザー、あるいはYAGレーザー励起、300～1000nm)、固体レーザー(Nd:YAG励起、半導体レーザー励起など)、ルビーレーザー(694nm)、半導体レーザー(650～980nm)、チューナブルダイオードレーザー(630～1550nm)、チタンサファイアレーザー(Nd:YAG励起、345～500nm、690～1000nm)、Nd:YAGレーザー(FHG:266nm、THG:354nm、SHG:532nm、基本波:1064nm)などが挙げられる。

40

【0073】

なお、工業的に使用されているレーザーの波長は限られている。本発明では、ソースが、吸光性高分子物質を含有するため、機能性低分子材料の種類や濃度と関わりなくソースの吸光係数を調整することもでき、エネルギー吸収効率を高めることができる。また、前記高分子物質が、レーザー光を吸収する機能を担うため、レーザー光の発振波長に応じて機能性低分子材料の種類を選択する必要が少ない。そのため、機能性低分子材料の選択幅

50

を拡げることができる。

【0074】

本発明の製造方法においては、通常、ソース（A）のアブレーション閾値以下の強度でレーザー光を照射することができる。アブレーション閾値以下のレーザー光を照射すると、ソース（A）中の機能性低分子材料を分解させることなく、有効にターゲット（B）内に注入できる。また、ソースの構成成分としてレーザー光吸収剤を用いても、前記吸収剤が高分子物質であるため、ソースからターゲットへの吸収剤の移動を防止して、アブレーション閾値以下のレーザー光照射により機能性低分子材料を選択的にターゲット内に注入できる。

【0075】

アブレーション閾値以下で照射すると、有機EL素子用材料表面の平滑性を低下させることなく、機能性低分子材料だけを注入できる。すなわち、本発明の方法により得られる有機EL素子用材料（特に、有機EL素子用フィルム）は、従来の材料に比べて、表面平滑性に優れており、電極との接着性も高い。

【0076】

なお、ソース（ソースフィルム）の構成成分（吸光性高分子物質、機能性低分子材料及びバインダー樹脂など）の種類が異なると、ソース（ソースフィルム）（A）のアブレーション閾値も異なる。また、アブレーション閾値は、レーザー光の波長及びパルス幅にも依存する。従って、本発明においては、アブレーション閾値を以下のように定義する。

【0077】

本発明で使用するソースフィルム及びレーザーと同一のものを使用して、ソースフィルムにレーザー光を1ショット照射し、このソースフィルムを接触型の表面形状測定装置（例えば、SLOAN社製、DEKTA K3030ST）で観察したとき、レーザー光照射表面に、50nm以上の形状変化が起こり得る照射表面での最小のレーザー光強度（ mJ/cm^2 ）を、本発明におけるアブレーション閾値と定義する。

【0078】

なお、機能性低分子材料の注入量は、例えば、前記レーザーの強度、波長、照射回数などを調整することによりコントロールすることができる。

【0079】

以下、図面を用いて本発明の有機EL用材料（有機EL素子用材料）（特に、有機EL素子用フィルム）の製造方法を説明する。図1には、本発明の製造方法の一例が示されている。図1では、ガラス基板6に支持され、吸光性高分子物質とバインダー樹脂とで構成されたベース4に機能性低分子材料3が分散されたソースフィルム1と、ガラス基板5との間に、前記ソースフィルム1と接触又は密着した状態でターゲットフィルム2を介在させ、ソースフィルム1側からソースフィルム1のアブレーション閾値以下の強度のレーザー光を照射している。高分子物質はレーザー光のエネルギーを高い吸収効率で吸収し、吸収した光エネルギーの少なくとも一部をソースフィルム1中の機能性低分子材料3に移動する。このエネルギー移動は、通常、前記高分子物質から熱エネルギーの形態で機能性低分子材料に伝播される場合が多い。一方、ソースフィルム1中の機能性低分子材料3は、高分子物質からの光エネルギーを吸収するため、高い並進エネルギーを有し、ソースフィルム1からターゲットフィルム2へ分解することなく注入され、有機EL素子用フィルムが得られる。前記機能性低分子材料は、前記高分子物質からの光エネルギーの吸収に加え、自らもレーザー光のエネルギーを吸収可能であってもよい。従って、本発明では、レーザー光のエネルギーを効率よく機能性低分子材料に付与することができ、エネルギー吸収効率を高めることができるとともに、機能性低分子材料を効率よくターゲットに注入できる。

【0080】

前記基板（ソース側及びターゲット側基板）としては、レーザー光を透過可能であれば特に制限されず、例えば、ソーダガラス、無アルカリガラス、石英ガラスなどのガラス板、あるいはポリエステル、ポリスルホン、ポリエーテルスルホンなどの高分子シートまた

10

20

30

40

50

はフィルムなどが挙げられる。フレキシブルな有機EL素子を作製する場合には、高分子フィルムが好ましい。

【0081】

本発明の方法において、レーザー光は、ターゲットフィルム側から照射してもよい。また、レーザー光の照射回数は、通常、1～50回、好ましくは1～25回程度であってもよい。

【0082】

レーザー光のビーム直径は、例えば、1 μm ～5 mm、好ましくは10 μm ～1 mm程度から選択できる。また、レーザーのビーム径を調整することにより、パターンニングを微細化してもよい。

10

【0083】

また、フォトリソを介在させてレーザー光を照射する場合、フォトリソによってパターンの大きさだけでなく形状も自由に設定できる。さらに、フォトリソを使用し、レーザーのビーム径を大きくすれば、一度に広い範囲のパターンニングが可能になる。

【0084】

また、異なる機能性低分子材料を有する複数のソースを使用してもよい。例えば、赤、緑又は青の発光中心形成化合物を含有する各ソースを使用すれば、発光色を容易に選択できる。そのため、多色で多彩な形状のパターンを有する有機EL素子用材料を得ることもできる。

【0085】

本発明の製造方法によれば、注入された機能性低分子材料は、ターゲット中に、分散又は拡散した形態ではなく、ステップ型（すなわち、ターゲット内に注入された深さが均一な矩形の形態）で注入できる。その深さは、機能性低分子材料やターゲットの種類、またはレーザー強度などにより異なるが、例えば、10 nm～300 nm、好ましくは15 nm～200 nm、さらに好ましくは20 nm～100 nm程度である。このように、機能性低分子材料をステップ型に注入すると、電圧を印加したときに電圧ムラなどが生じない。そのため、均一な発光が可能である。

20

【0086】

[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、上記方法により得られた有機EL用材料（有機EL素子用材料）（特に、機能性低分子材料が注入されたターゲットフィルムで構成された発光層）と、一対の電極から構成されている。

30

【0087】

陽極としては、真空蒸着法などにより形成された透明電極（例えば、インジウム－スズ－酸化物（ITO）電極）などが使用され、陰極としては、仕事関数の小さい高導電性金属（例えば、マグネシウム、リチウム、アルミニウム又は銀など）が使用される。陰極としてマグネシウムを使用する場合には、有機EL素子用フィルムとの接着性を向上させるために、少量（例えば、1～10重量%）の銀と共蒸着させてもよい。

【0088】

発光層が、電子輸送機能およびホール輸送機能を有する場合、本発明の有機EL素子は、単層構造が可能である。また、有機EL素子が、電子輸送機能およびホール輸送機能のうち、いずれか一方の機能を具備している場合には、他方の機能を有する層を積層してもよい。また、有機EL素子において、上記機能のうちいずれか一方の機能を向上させる場合には、その機能を有する層を積層させてもよい。なお、積層は、従来の蒸着法や溶液塗布法などにより行うことができる。これらの層（電子輸送層、ホール輸送層）は、低分子化合物及び高分子化合物のいずれで構成してもよい。有機EL素子の構造は、例えば、図2～5に示される単層または多層構造が可能である。

40

【0089】

すなわち、図2に示すように、基板10上に陽極11が形成され、その上に発光層12、陰極13が順に積層した有機EL素子、図3に示すように、基板20上に陽極21が形成され、その

50

上にホール輸送層24、発光層22、陰極23が順に積層した有機EL素子であってもよい。さらに、図4に示すように、基板30上に陽極31が形成され、その上に発光層32、電子輸送層35、陰極33が順に積層した有機EL素子、図5に示すように、基板40上に陽極41が形成され、その上にホール輸送層44、発光層42、電子輸送層45、陰極43が順に積層した有機EL素子であってもよい。前記陽極及び陰極には、それぞれリード線16a及び16b（26a及び26b、36a及び36b、又は46a及び46b）が接続されている。なお、前記ホール輸送層及び電子輸送層としては、それぞれ慣用のホール輸送層（又はフィルム）及び電子輸送層（又はフィルム）が使用できる。

【0090】

有機EL素子を構成する各層の膜厚は、特に制限されないが、10～1000nm（例えば、10～500nm）、好ましくは30～300nm、さらに好ましくは30～200nm程度である。フィルムを用いた場合、フィルムの膜厚は、上記と同様の範囲から選択できる。

【産業上の利用可能性】

【0091】

本発明の有機EL素子は、テレビ、パーソナルコンピュータディスプレイ、携帯電話などにおけるELディスプレイパネル（フラットパネルディスプレイ、フルカラーフラットパネルディスプレイなど）などの画像表示装置や、ELランプなどの用途に有用である。

【実施例】

【0092】

実施例1

（ソースフィルムの作製）

色素分子（林原生物化学研究所製，NKX-1645）20mgをポリヘキシルメタクリレート（PHMA）のトルエン溶液1.389g（固形分24.2重量%）に添加し、クロロベンゼン1.5mlをさらに加えて希釈した。さらに、ポリエステル型紫外線吸収剤（ダイセル化学工業（株）製，UVA-103）を0mg、5.8mg、8.9mg、又は13.5mg加えて、溶液をそれぞれ調製した。得られた溶液をそれぞれガラス基板上にスピンコーターにより、約1μmの膜厚に製膜した。なお、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより測定した前記ポリエステル型紫外線吸収剤の数平均分子量は、ポリスチレン換算で1660であった。

【0093】

（ターゲットフィルムの作製）

ポリエチルメタクリレート（PEMA）200mgをクロロベンゼン10mlに溶解し、ターゲット塗布溶液を調製した。スピンコーターを用いて、ガラス基板上に、ターゲット溶液を約0.1μmの厚みに製膜した。

【0094】

（レーザー注入法による色素の拡散）

ソースフィルムとターゲットフィルムとを重ね、ターゲットフィルム側からXeFエキシマレーザー（200mJ/cm²のフルエンス及び周波数10Hz）を、ステージ速度0.1mm/sの速度で移動させながら1500回照射した。

【0095】

照射後、ターゲット中に含まれる色素の量を液体クロマトグラフィー法により定量した。ソース中のポリエステル型紫外線吸収剤の吸光係数とターゲット中の色素分子の濃度（拡散量）との関係を図6に示す。図6より明らかなように、ソースフィルムに含まれる紫外線吸収剤の吸光係数が大きくなるにつれて、色素分子の拡散量も増加している。また、ターゲットフィルム内への紫外線吸収剤の拡散は検出されなかった。

【0096】

比較例1

実施例1におけるポリエステル型紫外線吸収剤の各濃度のソースフィルムに対して同じ

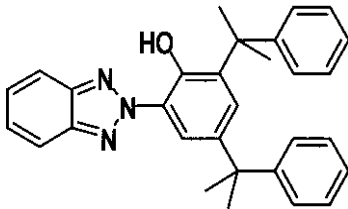
吸光係数になるように、ポリエステル型紫外線吸収剤に代えて、紫外線吸収剤（T I N U V I N 2 3 4，チバガイギー社製）を、0 m g、5．3 m g、1 0 m g又は2 0 m g添加する以外は、実施例1と同様に各フィルムを作製し、色素の注入を行い、ターゲット中の色素量を定量した。

【0097】

なお、前記紫外線吸収剤「T I N U V I N 2 3 4」は、下記式で表される構造を有している。

【0098】

【化4】



10

【0099】

比較例1では、実施例1と同様に、紫外線吸収剤の吸光係数が大きくなるにつれて、色素分子の拡散量も増加した。しかし、ターゲットフィルム内への紫外線吸収剤の拡散も確認された。

20

【図面の簡単な説明】

【0100】

【図1】図1は、発光中心形成化合物を注入する方法を説明するための概略図である。

【図2】図2は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の一例（単層構造）を示す概略断面図である。

【図3】図3は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の他の例（多層構造）を示す概略断面図である。

【図4】図4は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子のさらに他の例（多層構造）を示す概略断面図である。

【図5】図5は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の別の例（多層構造）を示す概略断面図である。

30

【図6】図6は、実施例1において、ソース中のポリエステル型紫外線吸収剤の濃度（ソースの吸光係数）とターゲットフィルム中の色素分子の濃度（拡散量）との関係を示すグラフである。

【符号の説明】

【0101】

1…ソースフィルム

2…ターゲットフィルム

3…機能性低分子材料

4，5…基板

10，20，30，40…基板

11，21，31，41…陽極

12，22，32，42…発光層

13，23，33，43…陰極

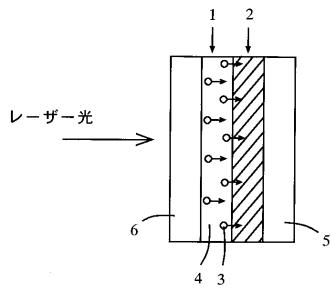
24，44…ホール輸送層

35，45…電子輸送層

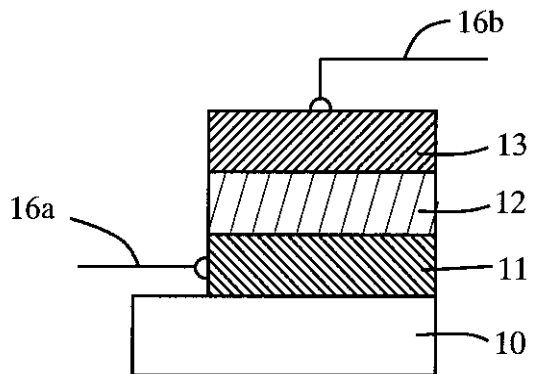
16a，16b，26a，26b，36a，36b，46a，46b…リード線

40

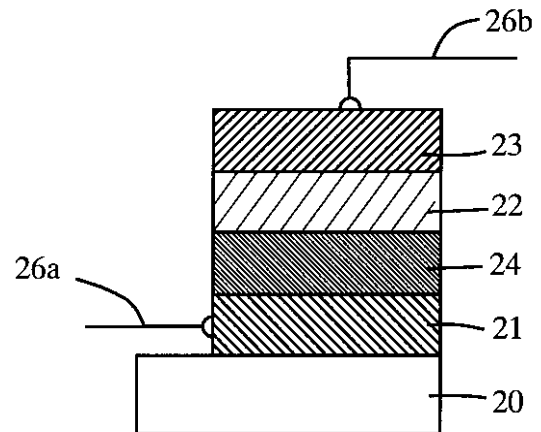
【図 1】



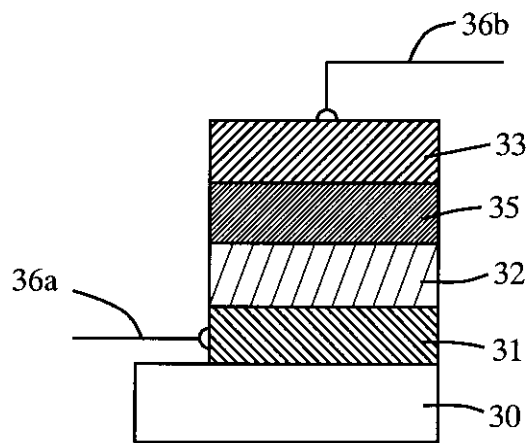
【図 2】



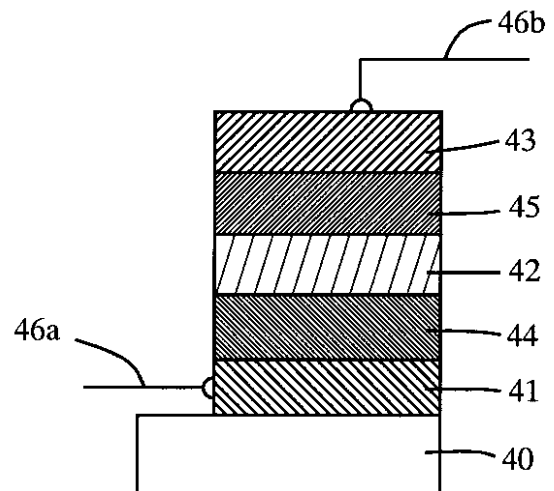
【図 3】



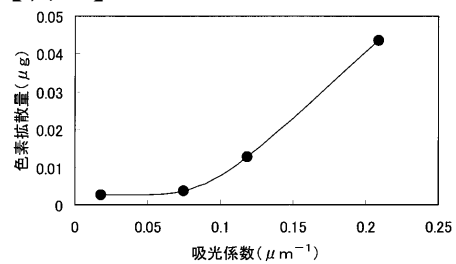
【図 4】



【図 5】



【図 6】



专利名称(译)	源组合物和制备有机电致发光元件材料的方法		
公开(公告)号	JP2005108749A	公开(公告)日	2005-04-21
申请号	JP2003343088	申请日	2003-10-01
[标]申请(专利权)人(译)	大赛璐股份有限公司		
申请(专利权)人(译)	大赛璐化学工业有限公司		
[标]发明人	北口透		
发明人	北口 透		
IPC分类号	H01L51/50 C09K3/00 H05B33/10 H05B33/14		
FI分类号	H05B33/14.B C09K3/00.104.A C09K3/00.104.C H05B33/10		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB03 3K007/AB04 3K007/AB17 3K007/DB03 3K007/FA01 3K107/AA01 3K107/CC25 3K107/CC45 3K107/DD59 3K107/DD60 3K107/DD69 3K107/FF14 3K107/GG02		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供使用激光束的分子注入方法，其中能量吸收效率得到改善，并且低分子材料被有效地注入靶中，而不管源中的功能性低分子材料的浓度如何。ŽSOLUTION：用于通过激光束将功能性低分子材料注入靶中的源组合物至少由功能性低分子材料（例如发光中心形成化合物）和具有用于照射的吸收区域的光吸收聚合物物质构成。激光束。吸收聚合物物质可含有聚合物型紫外线吸收剂。通过使由上述源组合物构成的源与能够透射激光束并从源侧或靶侧照射激光束的靶接触，并通过将源中的功能性低分子材料注入源中来制造有机电致发光元件。目标。Ž

