

(19)日本国特許庁 ( J P )

(12) 公 開 特 許 公 報 ( A ) (11)特許出願公開番号

特開2003 - 234190

(P2003 - 234190A)

(43)公開日 平成15年8月22日(2003.8.22)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード <sup>*</sup> ( 参考 )
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B 3 K 0 0 7
C 0 9 K 11/06	610	C 0 9 K 11/06	610
	690		690
H 0 5 B 33/22		H 0 5 B 33/22	B

審査請求 未請求 請求項の数 10 O L ( 全 15数 )

(21)出願番号 特願2002 - 29335(P2002 - 29335)

(22)出願日 平成14年2月6日(2002.2.6)

(71)出願人 000005223

富士通株式会社

神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番1号

(72)発明者 木下 正兒

神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番1号

富士通株式会社内

(72)発明者 外山 弥

神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番1号

富士通株式会社内

(74)代理人 100107515

弁理士 廣田 浩一

最終頁に続く

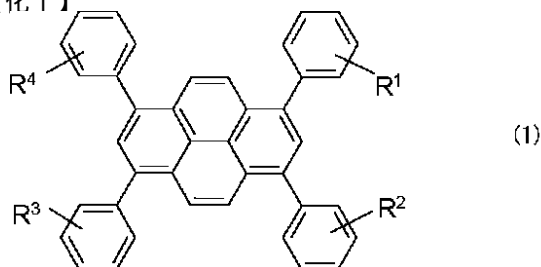
(54)【発明の名称】 有機 E L 素子及び有機 E L ディスプレイ

(57)【要約】

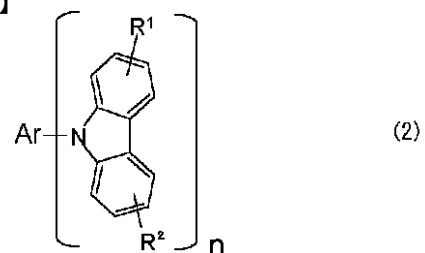
【課題】 青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に優れた有機 E L 素子を提供する。

【解決手段】 正極及び負極の間に、発光層を含む有機薄膜層を有してなり、該有機薄膜層における一層が、構造式(1)で表される1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物と、構造式(2)で表されるカルバゾール誘導体とを含有する有機 E L 素子。

【化1】



【化2】



ただし、前記構造式(2)中、Arは、多価の芳香族基又は複素環式芳香族基を表し、R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>は、互いに同一であってもよいし異なってもよく、水素原子又は置換基を表し、nは、整数を表す。構造式(2)で表されるカルバゾール誘導体が、下記構造式で表される4,4'-ビス(9-カルバゾリル)-ビフェニル(CBP)又はその誘導体である態様が好ましい。

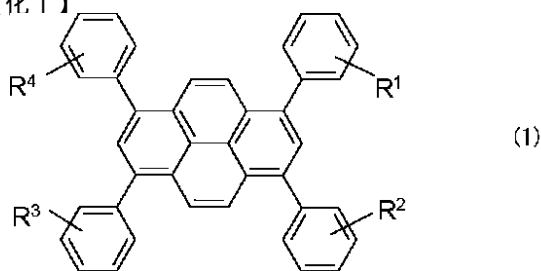
ただし、前記構造式(1)中、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>は、互いに同一であってもよいし異なってもよく、水素原子又は置換基を表す。

1

## 【特許請求の範囲】

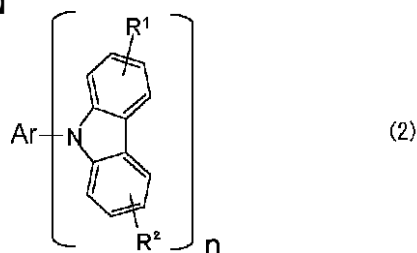
【請求項 1】 正極及び負極の間に、発光層を含む有機薄膜層を有してなり、該有機薄膜層における一層が、下記構造式(1)で表される 1, 3, 6, 8 - テトラフェニルピレン化合物と、下記構造式(2)で表されるカルバゾール誘導体とを含有することを特徴とする有機 EL 素子。

## 【化 1】



ただし、前記構造式(1)中、 $R^1 \sim R^4$ は、互いに同一であってもよいし異なってもよく、水素原子又は置換基を表す。

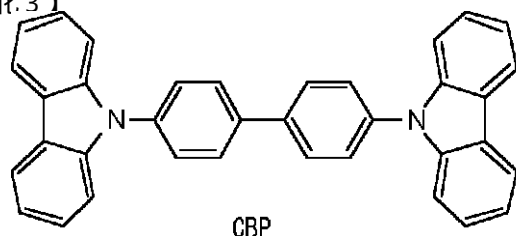
## 【化 2】



ただし、前記構造式(2)中、Ar は、多価の芳香族基又は複素環式芳香族基を表し、 $R^1$ 及び $R^2$ は、互に同一であってもよいし異なってもよく、水素原子又は置換基を表し、n は、整数を表す。

【請求項 2】 構造式(2)で表されるカルバゾール誘導体が、下記構造式で表される 4, 4' - ビス(9 - カルバゾリル) - ビフェニル(CBP)又はその誘導体である請求項 1 に記載の有機 EL 素子。

## 【化 3】



【請求項 3】 構造式(1)で表される 1, 3, 6, 8 - テトラフェニルピレン化合物を含有する層における該 1, 3, 6, 8 - テトラフェニルピレン化合物の含有量が、0.1 ~ 50 質量%である請求項 1 又は 2 に記載の有機 EL 素子。

【請求項 4】 構造式(1)で表される 1, 3, 6, 8 - テトラフェニルピレン化合物を含有する層における該

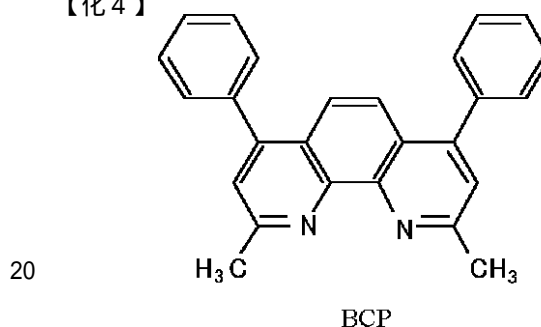
2

1, 3, 6, 8 - テトラフェニルピレン化合物の含有量が、5 ~ 30 質量%である請求項 1 又は 2 に記載の有機 EL 素子。

【請求項 5】 構造式(1)で表される 1, 3, 6, 8 - テトラフェニルピレン化合物を含有する層と負極との間に、正孔ブロック層を有してなる請求項 1 から 4 のいずれかに記載の有機 EL 素子。

【請求項 6】 正孔ブロック層が、下記構造式で表される 2, 9 - ジメチル - 4, 7 - ジフェニル - 1, 10 - フェナントリン(バソクプロリン; BCP)を含有してなる請求項 1 から 5 のいずれかに記載の有機 EL 素子。

## 【化 4】



【請求項 7】 EL 発光の CIE 色座標が  $y < 0.12$  である請求項 1 から 6 のいずれかに記載の有機 EL 素子。

【請求項 8】 青色発光用である請求項 1 から 7 のいずれかに記載の有機 EL 素子。

【請求項 9】 請求項 1 から 8 のいずれかに記載の有機 EL 素子を用いたことを特徴とする有機 EL ディスプレイ。

【請求項 10】 青色発色用有機 EL 素子、緑色発色用有機 EL 素子及び赤色発色用有機 EL 素子を有し、該青色発色用有機 EL 素子が請求項 1 から 8 のいずれかに記載の有機 EL 素子であり、該青色発色用有機 EL 素子、該緑色発色用有機 EL 素子及び該赤色発色用有機 EL 素子が、同一の正孔注入層及び正孔輸送層の少なくとも一方を共有してなる請求項 9 に記載の有機 EL ディスプレイ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機 EL 素子及び該有機 EL 素子を用いた有機 EL ディスプレイに関する。

## 【0002】

【従来の技術】有機 EL 素子は、自発光、高速応答などの特徴を持ち、フラットパネルディスプレイへの適用が期待されており、特に正孔輸送性の有機薄膜(正孔輸送層)と電子輸送性の有機薄膜(電子輸送層)とを積層した 2 層型(積層型)のものが報告されて以来(C. W. Tang and S. A. VanSlyke, Applied Physics Letters vo

1.51, 913 (1987))、10V以下の低電圧で発光する大面積発光素子として関心を集めている。積層型の有機EL素子は、正極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/負極、を基本構成とし、このうち発光層は、前記2層型の場合のように前記正孔輸送層又は前記電子輸送層にその機能を兼ねさせてもよい。

【0003】最近では、有機EL素子は、フルカラーディスプレイへの応用が期待されている。該フルカラーディスプレイにおいては、青(B)、緑(G)、赤(R)の3原色の発光を示す画素をパネル上に配列する必要がある、その方式として、(a)青(B)、緑(G)、赤(R)の各発光を示す3種類の有機EL素子を配列する方法、(b)白色発光(青(B)、緑(G)、赤(R)の光の混色)を示す有機EL素子からの発光をカラーフィルタで3原色に分離する方法、(c)青色発光を示す有機EL素子からの発光を、蛍光発光を利用する色変換層で緑(G)、赤(R)の発光に変換する方法、が提案されている。いずれの方式においても、青(B)の発光は必須であり、高輝度、高効率かつ高色純度を示す青色発光用の有機EL素子の提供が望まれている。

【0004】ところで、これまで前記青色発光用の有機EL素子としては、例えば、特開平9-241629号公報において開示されているような、芳香族縮合環化合物の一種であるピレン並びにそのアルキル誘導体及びシクロアルキル誘導体を発光材料として用いた有機EL素子が知られている。しかし、この有機EL素子の場合、該発光材料における蛍光量子収率が小さいため、青色発光の純度が十分とは言えないという問題があった。そこで、特開2001-118682号公報においては、高色純度の青色蛍光を示しその蛍光量子収率が特に大きな、1,3,6,8-テトラフェニルピレン及びその誘導体を用いた青色発光用の有機EL素子が提案されている(無置換ピレンの蛍光量子収率が0.3であるのに対し、1,3,6,8-テトラフェニルピレンの蛍光量子収率は0.9と大きい)。ところが、この有機EL素子の場合、EL特性、即ち発光輝度、発光効率、色純度等が十分でないという問題があり、実用上更なる改良が求められている。

【0005】一方、高発光効率の有機EL素子を得る目的で、主成分であるホスト材料中に蛍光発光性の高い色素分子をゲスト材料として少量ドープさせることにより、高い発光効率を示す発光層を有する有機EL素子が提案されている(C. W. Tang, S. A. VanSlyke, and C. H. Chen, Applied Physics Letters vol.65, 3610 (1994))。例えば、特開平11-312588号公報における実施例9では、前記発光層における前記ホスト材料として9,10-ジ-(3',5'-o-トリル)フェニルアントラセンを用い、前記ゲスト材料としてテトラフェニルピレンを用いる旨が開示されている。しかし、この場合、テトラフェニルピレンをドープした効果は殆ど無

く、発光輝度も低く色純度も十分とは言えなかった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、前記要望に応え、従来における前記諸問題を解決し、以下の目的を達成することを課題とする。本発明は、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に優れた有機EL素子、及び、該有機EL素子を用いた高性能な有機ELディスプレイを提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】前記課題を解決するために発明者らが鋭意検討した結果、以下の知見を得た。即ち、特定の1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物をゲスト材料として用い、特定のカルバゾール誘導体をホスト材料として用いた有機EL素子及び有機ELディスプレイは、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に優れ、高性能であり、従来のもよりも高性能であるという知見である。本発明は、本発明者らによる前記知見に基づくものであり、前記課題を解決するための手段は、後述の(付記1)~(付記14)として記載した通りである。

【0008】前記(付記1)に記載の有機EL素子においては有機薄膜層が、前記(付記2)に記載の有機EL素子においては発光層が、それぞれ特定の1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物と特定のカルバゾール誘導体とを含有するため、また、前記(付記3)に記載の有機EL素子は、特定の1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物及び特定のカルバゾール誘導体が特定の置換基を有するので、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に優れる。即ち、これらの有機EL素子においては、その有機薄膜層乃至発光層が、ゲスト材料として特定の1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物を含有し、更に発光波長が該ゲスト材料の光吸収波長付近にあるホスト材料として特定のカルバゾール誘導体をも含有する。該有機薄膜層乃至発光層は、主成分であるホスト材料として製膜性に優れるカルバゾール誘導体を用いるので製膜性に優れる。また、前記有機薄膜層乃至発光層においては、正極から注入された正孔と、負極から注入された電子とが再結合することにより、再結合サイトとなった分子が励起されるが、該有機薄膜層乃至発光層は、前記ゲスト材料(1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物)及び前記ホスト材料(カルバゾール誘導体)を含有するので、双方の化合物が前記再結合サイトになり得る。前記有機薄膜層乃至発光層においては、主成分である前記ホスト材料が前記再結合サイトとなる割合が多く、該ホスト材料が前記再結合サイトである場合には、まず、該ホスト材料が励起される。そして、該ホスト材料(カルバゾール誘導体)の発光波長と、前記ゲスト材料(1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物)の吸収波長とが重なり合う場合、該ホスト材料から該ゲスト材料へと励起エネルギーが効率的に移動し、

該ホスト材料は発光することなく基底状態に戻り、励起状態となった該ゲスト材料のみが励起エネルギーを青色光として放出するため、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に優れる。

【0009】前記（付記4）に記載の有機EL素子では、前記ホスト材料が4,4'-ビス（9-カルバゾリル）-ピフェニル（CBP）であるので、該4,4'-ビス（9-カルバゾリル）-ピフェニル（CBP）からゲスト材料である1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物への励起エネルギーの効率的かつ有効な移動が生じ、該4,4'-ビス（9-カルバゾリル）-ピフェニル（CBP）の発光を殆ど生ずることないため、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に優れる。

【0010】また、一般に薄膜中に発光分子が単独又は高濃度で存在する場合には、発光分子どうしが接近することにより発光分子間で相互作用が生じ、「濃度消光」と呼ばれる発光効率低下現象が起こるが、前記有機薄膜層乃至発光層においては、前記ゲスト材料である前記1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物が前記ホスト材料であるカルバゾール誘導体中に比較的低濃度で分散されているので、前記「濃度消光」が効果的に抑制され、発光効率に優れる。

【0011】前記（付記5）及び前記（付記6）に記載の有機EL素子においては、1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物の含有量が特定の範囲であるので、前記カルバゾール誘導体から該1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物へと励起エネルギーが効率的に移動すると共に濃度消光による発光効率低下を避けることができ、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に特に優れる。前記（付記7）及び前記（付記8）に記載の有機EL素子においては、正孔ブロッキング層を有するので、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に特に優れる。前記（付記9）に記載の有機EL素子では、発光層の厚みが所定範囲内にあるので、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に特に優れる。前記（付記10）に記載の有機EL素子では、EL発光のCIE色座標におけるy値が所定範囲内にあるので、青色光の色純度に特に優れる。前記（付記11）に記載の有機EL素子は、青色発色用として用いられる。

【0012】前記（付記12）に記載の有機ELディスプレイは、前記（付記1）から（付記11）のいずれかに記載の有機EL素子を用いているので、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に優れる。前記（付記13）に記載の有機ELディスプレイは、3原色の有機EL素\*

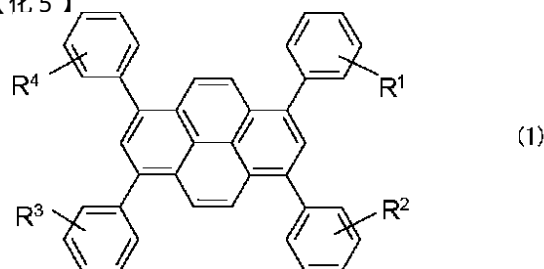
\*子が正孔注入層乃至正孔輸送層として同一のものを共有するので、該正孔注入層乃至正孔輸送層のパターニングが不要であり構造が簡単で製造が容易であり、正極・負極の短絡も防ぐことができる。前記（付記14）に記載の有機ELディスプレイは、パッシブマトリクスパネル方式又はアクティブマトリクスパネル方式で発光し、該有機ELディスプレイにおいて前記有機EL素子は、駆動電流が印加された際に青色に発光する。

【0013】

【発明の実施の形態】＜有機EL素子＞本発明の有機EL素子は、正極及び負極の間に、発光層を含む有機薄膜層を有してなり、該有機薄膜層における一層が、下記構造式（1）で表される1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物と、下記構造式（2）で表されるカルバゾール誘導体とを少なくとも含有してなる。

【0014】

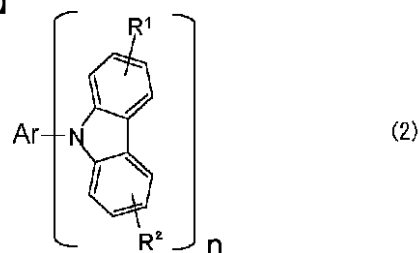
【化5】



ただし、前記構造式（1）中、 $R^1 \sim R^4$ は、互いに同一であってもよいし異なってもよく、水素原子又は置換基を表す。該置換基としては、例えば、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基が好適に挙げられ、これらは更に置換基で置換されていてもよい。

【0015】

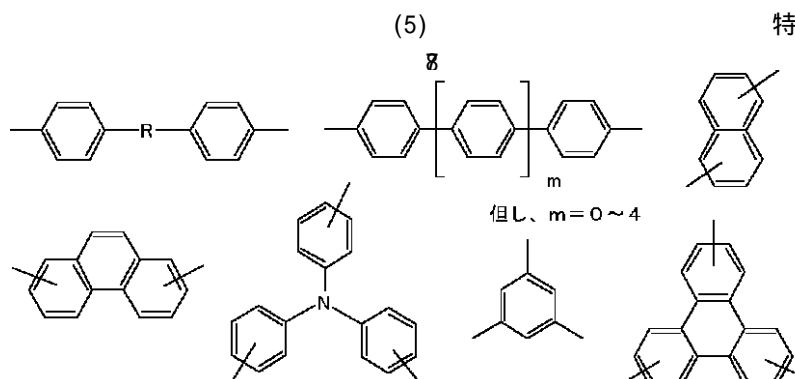
【化6】



ただし、前記構造式（2）中、Arは、多価の芳香族基又は複素環式芳香族基を表し、以下の2価又は3価の芳香族基又は複素環式芳香族基が好適に挙げられる。

【0016】

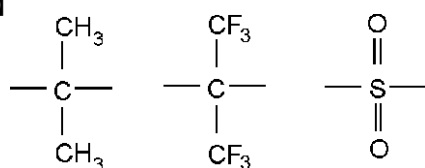
【化7】



これらは、非共役性の基で置換されていてもよく、また、Rは、連結基を表し、例えば以下のものが好適に挙げられる。

【0017】

【化8】

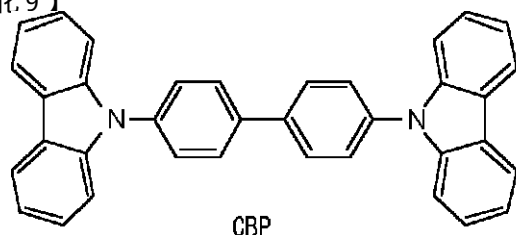


【0018】前記構造式(2)中、 $R^1$ 及び $R^2$ は、互いに同一であってもよいし異なってもよく、水素原子又は置換基を表す。該置換基としては、例えば、ハロゲン原子、又は、アルキル基、アルキルスルホニル基、アラルキル基、アルケニル基、水酸基、シアノ基、アミノ基、アミド基、アシル基、カルボキシ基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基、アリール基、アリーロキシ基、芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基などが好適に挙げられ、これらは更に置換基で置換されていてもよい。nは、整数を表し、2又は3が好適に挙げられる。

【0019】前記構造式(2)の中でも、Arが、ベンゼン環が単結合を介して2つ連結された芳香族基であり、 $R^1$ 及び $R^2$ が水素原子であり、 $n = 2$ であるもの、即ち、下記構造式で表される4,4'-ビス(9-カルバゾリル)-ビフェニル(CBP)が、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に特に優れる点で好ましい。

【0020】

【化9】



【0021】前記1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物及び前記カルバゾール誘導体は、前記有機薄膜層に含有されるが、該有機薄膜層における電子輸送層、正孔輸送層及び発光層の少なくともいずれかに含有され

るのが好ましく、該発光層に含有されるのがより好ましい。

【0022】前記有機薄膜層乃至前記発光層においては、前記1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物がゲスト材料として機能し、前記カルバゾール誘導体がホスト材料として機能する。即ち、前記1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物の光吸収波長は330~400nmであり、前記カルバゾール誘導体の中でも前記4,4'-ビス(9-カルバゾリル)-ビフェニル

(CBP)は、主発光波長が380nmである。該4,4'-ビス(9-カルバゾリル)-ビフェニル(CBP)は、その光吸収波長が該1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物よりも短波長側にあり、かつその発光波長が該1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物の光吸収波長付近にあり、重なっているため、励起された前記ホスト材料(4,4'-ビス(9-カルバゾリル)-ビフェニル(CBP))から前記ゲスト材料(1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物)へと励起エネルギーが効率的に移動し、該ホスト材料は発光することなく基底状態に戻り、励起状態となった該ゲスト材料(1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物)のみが励起エネルギーを青色光として放出するため、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に極めて優れる点で有利である。更に、前記有機薄膜層乃至前記発光層においては、前記1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物が前記ホスト材料(4,4'-ビス(9-カルバゾリル)-ビフェニル(CBP))中に比較的低濃度で分散されており、前記「濃度消光」が効果的に抑制され、発光効率に優れる点で有利である。また、この場合、4,4'-ビス(9-カルバゾリル)-ビフェニル(CBP)が製膜性に優れるので、前記1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物自体の製膜性に関わらず製膜性に優れる点で有利である。なお、前記有機薄膜層乃至前記発光層は、本発明の効果を害しない限り、前記ホスト材料を複数種含有していてもよい。

【0023】前記構造式(1)で表される1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物を含有する層(前記有機薄膜層乃至前記発光層)における該1,3,6,8-テトラフェニルピレン化合物の含有量としては、0.1~50質量%であるのが好ましく、5~30質量%であるのがより好ましい。前記含有量が、0.1質量%未満

であると、発色効率・発色輝度・色純度等が十分でないことがあり、50質量%を超えると、色純度が低下することがあり、一方、前記より好ましい範囲であると、発色効率・発色輝度・色純度等に優れる点で好ましい。なお、一般には、前記ゲスト材料の含有量が多くなると、前記「濃度消光」が生じ易い傾向にあるが、本発明においては、特定の前記ホスト材料と併用する結果、該ゲスト材料の含有量を多くしても、前記「濃度消光」が生じない。

【0024】本発明の有機EL素子における前記発光層は、電界印加時に前記正極、正孔注入層、前記正孔輸送層等から正孔を注入することができ、前記負極、電子注入層、前記電子輸送層等から電子を注入することができ、更に該正孔と該電子との再結合の場を提供し、該再結合の際に生ずる再結合エネルギーにより、青色の発光を示す前記1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物(発光分子)を発光させる機能を有していればよく、該1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物以外に、該青色の発光を害しない範囲内において他の発光材料を含有していてもよい。

【0025】前記発光層は、公知の方法に従って形成することができるが、例えば、蒸着法、湿式製膜法、MBE(分子線エピタキシー)法、クラスターイオンビーム法、分子積層法、LB法、印刷法、転写法、などにより好適に形成することができる。これらの中でも、有機溶媒を用いず廃液処理の問題がなく、低コストで簡便かつ効率的に製造することができる点で蒸着法が好ましいが、前記発光層を単層構造に設計する場合には、例えば、該発光層を正孔輸送層兼発光層兼電子輸送層等として形成する場合には湿式製膜法も好ましい。

【0026】前記蒸着法としては、特に制限はなく、目的に応じて公知のものの中から適宜選択することができるが、例えば、真空蒸着法、抵抗加熱蒸着、化学蒸着法、物理蒸着法、などが挙げられ、該化学蒸着法としては、例えば、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法などが挙げられる。前記蒸着法による前記発光層の形成は、例えば、前記1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物を真空蒸着することにより、該発光層が前記1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物以外に前記ホスト材料を含有する場合には該1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物及び該ホスト材料を真空蒸着による同時蒸着することにより、好適に行うことができる。

【0027】前記湿式製膜法としては、特に制限はなく、目的に応じて公知のものの中から適宜選択することができるが、例えば、インクジェット法、スピンコート法、ニードルコート法、バーコート法、ブレードコート法、キャスト法、ディップ法、カーテンコート法などが挙げられる。

【0028】前記湿式製膜法の場合、前記発光層の材料

を樹脂成分と共に溶解乃至分散させた溶液を用いる(塗布等すること)ことができ、該樹脂成分としては、例えば、ポリビニルカルバゾール、ポリカーボネート、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、などが挙げられる。

【0029】前記湿式製膜法による前記発光層の形成は、例えば、前記1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物及び必要に応じて用いる前記樹脂材料を溶剤に溶液(塗布液)を用いる(塗布し乾燥すること)により、該発光層が前記1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物以外に前記ホスト材料を含有する場合には該1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物、該ホスト材料及び必要に応じて用いる前記樹脂材料を溶剤に溶解した溶剤に溶液(塗布液)を用いる(塗布し乾燥すること)により、好適に行うことができる。

【0030】前記発光層の厚みとしては、1~50nmが好ましく、3~20nmがより好ましい。前記発光層の厚みが、前記好ましい数値範囲であると、該有機EL素子により発光される青色光の発光効率・発光輝度・色純度が十分であり、前記より好ましい数値範囲であるとそれが顕著である点で有利である。

【0031】本発明の有機EL素子は、正極及び負極の間に、発光層を含む有機薄膜層を有してなり、目的に応じて保護層等のその他の層を有していてもよい。前記有機薄膜層は、少なくとも前記発光層を有し、更に必要に応じて、正孔注入層、正孔輸送層、正孔ブロッキング層、電子輸送層、などを有していてもよい。

【0032】- 正極 -  
前記正極としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、前記有機薄膜層に、具体的には該有機薄膜層が前記発光層のみを有する場合には該発光層に、該有機薄膜層が更に前記正孔輸送層を有する場合には該正孔輸送層に、該有機薄膜層が更に前記正孔注入層を有する場合には該正孔注入層に、正孔(キャリア)を供給することができるものが好ましい。

【0033】前記正極の材料としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物などが挙げられ、これらの中でも仕事関数が4eV以上の材料が好ましい。

【0034】前記正極の材料の具体例としては、酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金属酸化物、金、銀、クロム、ニッケル等の金属、これらの金属と導電性金属酸化物との混合物又は積層物、ヨウ化銅、硫化銅等の無機導電性物

質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール等の有機導電性材料、これらとITOとの積層物、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。これらの中でも、導電性金属酸化物が好ましく、生産性、高伝導性、透明性などの観点からはITOが特に好ましい。

【0035】前記正極の厚みとしては、特に制限はなく、材料等により適宜選択可能であるが、1～5000nmが好ましく、20～200nmがより好ましい。

【0036】前記正極は、通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス等のガラス、透明樹脂等の基板上に形成される。前記基板として前記ガラスを用いる場合、該ガラスからの溶出イオンを少なくする観点からは、前記無アルカリガラス、シリカなどのバリアコートをした前記ソーダライムガラスが好ましい。

【0037】前記基板の厚みとしては、機械的強度を保つのに十分な厚みであれば特に制限はないが、該基材としてガラスを用いる場合には、通常0.2mm以上であり、0.7mm以上が好ましい。

【0038】前記正極は、例えば、蒸着法、湿式製膜法、電子ビーム法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（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（高周波励起イオンプレーティング法）、分子積層法、LB法、印刷法、転写法、化学反応法（ゾル-ゲル法など）により該ITOの分散物を塗布する方法、などの上述した方法により好適に形成することができる。

【0039】前記正極は、洗浄、その他の処理を行うことにより、該有機EL素子の駆動電圧を低下させたり、発光効率を高めることも可能である。前記その他の処理としては、例えば、前記正極の素材がITOである場合には、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが好適に挙げられる。

【0040】- 負極 -

前記負極としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、前記有機薄膜層に、具体的には該有機薄膜層が前記発光層のみを有する場合には該発光層に、該有機薄膜層が更に前記電子輸送層を有する場合には該電子輸送層に、該有機薄膜層及び該負極間に電子注入層を有する場合には該電子注入層に、電子を供給することができるものが好ましい。

【0041】前記負極の材料としては、特に制限はなく、前記電子輸送層、前記発光層などの該負極と隣接する層乃至分子との密着性、イオン化ポテンシャル、安定性等に応じて適宜選択することができ、例えば、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物などが挙げられる。

【0042】前記負極の材料の具体例としては、アルカリ金属（例えばLi、Na、K、Csなど）、アルカリ土類金属（例えばMg、Caなど）、金、銀、鉛、アル\*

\*ミニウム、ナトリウム-カリウム合金又はそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金又はそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金又はそれらの混合金属、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属、これらの合金、などが挙げられる。これらは1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。これらの中でも、仕事関数が4eV以下の材料が好ましく、アルミニウム、リチウム-アルミニウム合金又はそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金又はそれらの混合金属、などがより好ましい。

【0043】前記負極の厚みとしては、特に制限はなく、該負極の材料等に応じて適宜選択することができるが、1～10000nmが好ましく、20～200nmがより好ましい。

【0044】前記負極は、例えば、蒸着法、湿式製膜法、電子ビーム法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（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（高周波励起イオンプレーティング法）、分子積層法、LB法、印刷法、転写法、などの上述した方法により好適に形成することができる。前記負極の材料として2種以上を併用する場合には、該2種以上の材料を同時に蒸着し、合金電極等を形成してもよいし、予め調製した合金を蒸着させて合金電極等を形成してもよい。

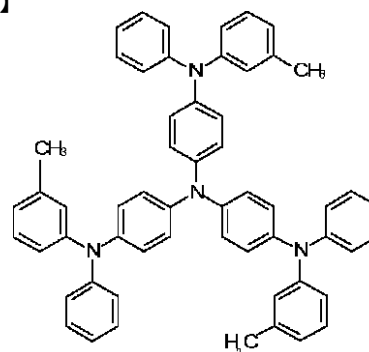
【0045】前記正極及び前記負極の抵抗値としては、低い方が好ましく、数百Ω以下であるのが好ましい。

【0046】- 正孔注入層 -

前記正孔注入層としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、電界印加時に前記正極から正孔を注入する機能を有しているものであるのが好ましい。前記正孔注入層の材料としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、下記式で表されるスターバーストアミン（4,4',4''-tris[3-methylphenyl(phenyl)amino]triphenylamine : m-MTDATA）、銅フタロシアニン、ポリアニリン、などが好適に挙げられる。

【0047】

【化10】



【0048】前記正孔注入層の厚みとしては、特に制限

はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、1～100nm程度が好ましく、5～50nmがより好ましい。前記正孔注入層は、例えば、蒸着法、湿式製膜法、電子ビーム法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（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（高周波励起イオンプレーティング法）、分子積層法、LB法、印刷法、転写法、などの上述した方法により好適に形成することができる。

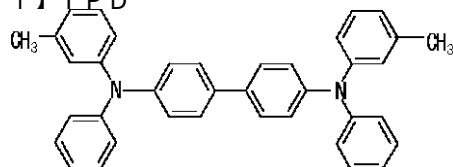
#### 【0049】 - 正孔輸送層 -

前記正孔輸送層としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、電界印加時に前記正極からの正孔を輸送する機能を有しているものが好ましい。

【0050】前記正孔輸送層の材料としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、芳香族アミン化合物、カルバゾール、イミダゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ポリアリールアルカン、ピラゾリン、ピラゾロン、フェニレンジアミン、アリールアミン、アミノ置換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、スチリルアミン、芳香族ジメチリジン化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー及びポリマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー及びポリマー、カーボン膜、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよく、これらの中でも、芳香族アミン化合物が好ましく、具体的には、下記式で表されるTPD（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）、下記式で表されるNPD（N，N'-ジナフチル - N，N'-ジフェニル - [1，1'-ビフェニル] - 4，4'-ジアミン）などがより好ましい。

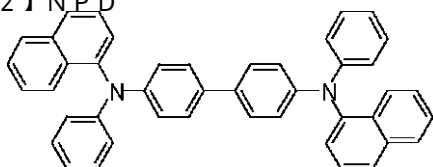
#### 【0051】

##### 【化11】 TPD



#### 【0052】

##### 【化12】 NPD



【0053】前記正孔輸送層の厚みとしては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、通常1～500nmであり、10～100nmが好ましい。

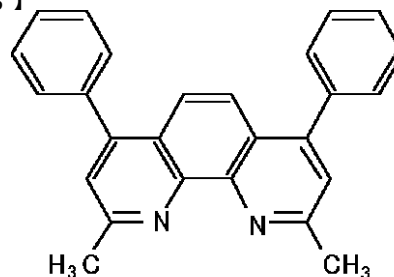
【0054】前記正孔輸送層は、例えば、蒸着法、湿式製膜法、電子ビーム法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシー）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、分子積層法、LB法、印刷法、転写法、などの上述した方法により好適に形成することができる。

#### 【0055】 - 正孔ブロッキング層 -

前記正孔ブロッキング層としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、前記正極から注入された正孔を障壁する機能を有しているものが好ましい。

【0056】前記正孔ブロッキング層の材料としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、下記構造式で表される2，9-ジメチル-4，7-ジフェニル-1，10-フェナントリン（バソクプロリン；BCP）、などが好適に挙げられる。

#### 【化13】



BCP

【0057】前記有機EL素子が前記正孔ブロッキング層を有していると、正極側から輸送されてきた正孔が該正孔ブロッキング層でブロックされ、負極から輸送されてきた電子は該正孔ブロッキング層を通過して前記発光層に到達することにより、該発光層で効率良く電子と正孔との再結合が生じるため、該発光層以外の有機薄膜層での前記正孔と前記電子との再結合を防ぐことができ、目的とする発光材料である前記1，3，6，8-テトラフェニルピレン化合物からの発光が効率的に得られ、色純度等の点で有利である。前記正孔ブロッキング層は、前記発光層と前記電子輸送層との間に配置されるのが好ましい。

【0058】前記正孔ブロッキング層の厚みとしては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、通常1～500nm程度であり、10～50nmが好ましい。前記正孔ブロッキング層は、単層構造であってもよいし、積層構造であってもよい。前記正孔ブロッキング層は、例えば、蒸着法、湿式製膜法、電子ビーム法、スパッタリング法、反応性スパッタリング



法、MBE（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（高周波励起イオンプレーティング法）、分子積層法、LB法、印刷法、転写法、などの上述した方法により好適に形成することができる。

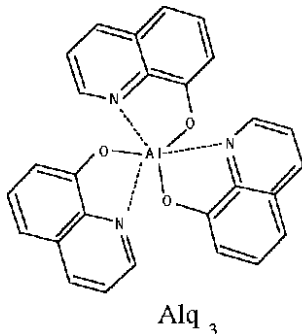
#### 【0059】- 電子輸送層 -

前記電子輸送層としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、前記負極からの電子を輸送する機能、前記正極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものが好ましい。

【0060】前記電子輸送層の材料としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、下記構造式で表されるトリス（8-キノリノラト）アルミニウム（Alq）等の8-キノリノール乃至その誘導体を配位子とする有機金属錯体などのキノリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、フェナントリン誘導体、ペリレン誘導体、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体など、などが挙げられる。

#### 【0061】アルミニウムキノリン錯体（Alq）

##### 【化14】



【0062】前記電子輸送層の厚みとしては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、通常1～500nm程度であり、10～50nmが好ましい。前記電子輸送層は、単層構造であってもよいし、積層構造であってもよい。前記電子輸送層は、例えば、蒸着法、湿式製膜法、電子ビーム法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（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（高周波励起イオンプレーティング法）、分子積層法、LB法、印刷法、転写法、などの上述した方法により好適に形成することができる。

#### 【0063】- その他の層 -

本発明の有機EL素子は、目的に応じて適宜選択したその他の層を有していてもよく、該その他の層としては、例えば、保護層、などが好適に挙げられる。

【0064】前記保護層としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、水分

や酸素等の有機EL素子を劣化促進させる分子乃至物質が有機EL素子内に侵入することを抑止可能であるものが好ましい。前記保護層の材料としては、例えば、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物、SiN、SiN<sub>x</sub>O<sub>y</sub>等の窒化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質などが挙げられる。

【0065】前記保護層は、例えば、蒸着法、湿式製膜法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（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（高周波励起イオンプレーティング法）、印刷法、転写法、などの上述した方法により好適に形成することができる。

【0066】本発明の有機EL素子の構造としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、その層構成としては、例えば、以下の(1)～(13)の層構成、即ち、(1)正極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/負極、(2)正極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/負極、(3)正極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/負極、(4)正極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/負極、(5)正極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層兼電子輸送層/電子注入層/負極、(6)正極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層兼電子輸送層/負極、(7)正極/正孔輸送層/発光層兼電子輸送層/電子注入層/負極、(8)正極/正孔輸送層/発光層兼電子輸送層/負極、(9)正極/正孔注入層/正孔輸送層兼発光層/電子輸送層/電子注入層/負極、(10)正極/正孔注入層/正孔輸送層兼発光層/電子輸送層/負極、(11)正極/正孔輸送層兼発光層/電子輸送層/電子注入層/負極、(12)正極/正孔輸送層兼発光層/電子輸送層/負極、(13)正極/正孔輸送層兼発光層兼電子輸送層/負極、などが好適に挙げられる。なお、前記有機EL素子が前記正孔ブロッキング層を有する場合には、前記(1)～(13)において、前記発光層と前記電子輸送層との間に該正孔ブロッキング層が配置される層構成が好適に挙げられる。

【0067】これらの層構成の内、前記(4)正極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/負極の態様を図示すると、図1の通りであり、有機EL素子10は、ガラス基

板 12 上に形成された正極 14 (例えば ITO 電極) と、正孔輸送層 16 と、発光層 18 と、電子輸送層 20 と、負極 22 (例えば Al-Li 電極) とをこの順に積層してなる層構成を有する。なお、正極 14 (例えば ITO 電極) と負極 22 (例えば Al-Li 電極) とは電源を介して互いに接続されている。正孔輸送層 16 と発光層 18 と電子輸送層 20 とで青色発光用の有機薄膜層 24 が形成されている。また、前記正孔ブロッキング層が配置された層構成の態様を図示すると、図 2 の通りであり、この有機 EL 素子は、ガラス基板 12 上に形成された ITO 電極 (正極) と、正孔注入層と、正孔輸送層と、発光層と、正孔ブロッキング層と、電子輸送層と、Al-Li 電極 (負極) とをこの順に積層してなる層構成を有する。なお、ITO 電極と Al-Li 電極とは電源を介して互いに接続されている。正孔注入層と正孔輸送層と発光層と正孔ブロッキング層と電子輸送層とで青色発光用の有機薄膜層が形成されている。

【0068】本発明の有機 EL 素子の発色波長としては、400 ~ 500 nm が好ましい。本発明の有機 EL 素子における EL 発光の CIE 色座標としては、y 値が低いほど色純度の点で好ましく、 $y < 0.12$  であるのがより好ましい。本発明の有機 EL 素子の発光効率としては、電圧 10 V 以下で青色発光することが望まれ、7 V 以下で青色発光するのが好ましく、5 V 以下で青色発光するのがより好ましい。本発明の有機 EL 素子の発光輝度としては、印加電圧 10 V において、 $100 \text{ cd/m}^2$  以上であるのが好ましく、 $500 \text{ cd/m}^2$  以上であるのがより好ましく、 $1000 \text{ cd/m}^2$  以上であるのが特に好ましい。

【0069】本発明の有機 EL 素子は、例えば、コンピュータ、車載用表示器、野表示器、家庭用機器、業務用機器、家電用機器、交通関係表示器、時計表示器、カレンダー表示器、ルミネッセントスクリーン、音響機器等をはじめとする各種分野において好適に使用することができるが、以下の本発明の有機 EL ディスプレイに特に好適に使用することができる。

【0070】<有機 EL ディスプレイ> 本発明の有機 EL ディスプレイは、前記本発明の有機 EL 素子を用いたこと以外は、特に制限はなく、公知の構成を適宜採用することができる。

【0071】前記有機 EL ディスプレイは、青色の単色発光のものであってもよいし、多色発光のものであってもよいし、フルカラータイプのものであってもよい。前記有機 EL ディスプレイをフルカラータイプのものである方法としては、例えば「月刊ディスプレイ」、2000 年 9 月号、33 ~ 37 ページに記載されているように、色の 3 原色 (青色 (B)、緑色 (G)、赤色 (R)) に対応する光をそれぞれ発光する有機 EL 素子を基板上に配置する 3 色発光法、白色発光用の有機 EL 素子による白色発光をカラーフィルターを通して 3 原色\* 50

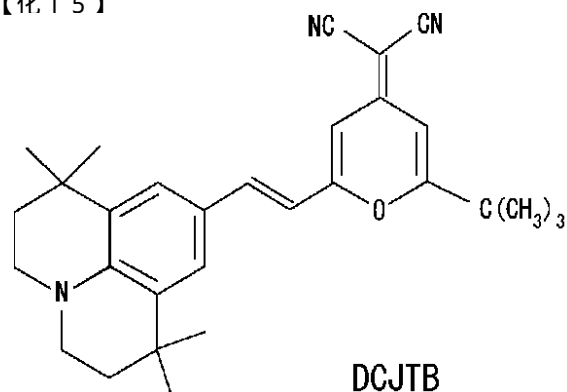
\*に分ける白色法、青色発光用の有機 EL 素子による青色発光を蛍光色素層を通して赤色 (R) 及び緑色 (G) に変換する色変換法、などが知られているが、本発明においては、用いる前記本発明の有機 EL 素子が青色発光用であるので、3 色発光法、色変換法などを好適に採用することができ、3 色発光法を特に好適に採用することができる。

【0072】前記 3 色発光法によりフルカラータイプの有機 EL ディスプレイを製造する場合には、青色発光用としての前記本発明の有機 EL 素子のほかに、赤色発光用の有機 EL 素子及び緑色発光用の有機 EL 素子が必要になる。

【0073】前記赤色発光用の有機 EL 素子としては、特に制限はなく、公知のものの中から適宜選択することができるが、例えば層構成が、ITO (正極) / 前記 NPD / 下記式で表される DCJT B 1% アルミニウムキノリン錯体 (Alq) / 前記 Alq / Al-Li (負極)、であるものなどが好適に挙げられる。前記 DCJT B は、4-dicyanomethylene-6-cp-julolidinostyryl-2-tert-butyl-4H-pyran である。

【0074】

【化 15】



【0075】前記緑色発光用の有機 EL 素子としては、特に制限はなく、公知のものの中から適宜選択することができるが、例えば層構成が、ITO (正極) / 前記 NPD / ジメチルキナクドリン 1% 前記 Alq / 前記 Alq / Al-Li (負極)、であるものなどが好適に挙げられる。

【0076】前記有機 EL ディスプレイの態様としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、「日経エレクトロニクス」、No. 765, 2000 年 3 月 13 日号、55 ~ 62 ページに記載されているような、パッシブマトリクスパネル、アクティブマトリクスパネルなどが好適に挙げられる。

【0077】前記パッシブマトリクスパネルは、例えば、図 3 に示すように、ガラス基板 12 上に、互いに平行に配置された帯状の正極 14 (例えば ITO 電極) を有し、正極 14 上に、互いに順番に平行にかつ正極 14 と略直交方向に配置された帯状の青色発光用の有機薄膜

層 24、緑色発光用の有機薄膜層 26 及び赤色発光用の有機薄膜層 28 を有し、青色発光用の有機薄膜層 24、緑色発光用の有機薄膜層 26 及び赤色発光用の有機薄膜層 28 上に、これらと同形状の負極 22 を有してなる。

【0078】前記パッシブマトリクスパネルにおいては、例えば、図 4 に示すように、複数の正極 14 からなる正極ライン 30 と、複数の負極 22 からなる負極ライン 32 とが互いに略直行方向に交差して回路が形成されている。各交差点に位置する、青色発光用、緑色発光用及び赤色発光用の各有機薄膜層 24、26 及び 28 が画素として機能し、各画素に対応して有機 EL 素子 34 が複数存在している。該パッシブマトリクスパネルにおいて、正極ライン 30 における正極 14 の 1 つと、負極ライン 32 における負極 22 の 1 つとに対し、定電流源 36 により電流を印加すると、その際、その交差点に位置する有機 EL 薄膜層に電流が印加され、該位置の有機 EL 薄膜層が発光する。この画素単位の発光を制御することにより、容易にフルカラーの画像を形成することができる。

【0079】前記アクティブマトリクスパネルは、例えば、図 5 に示すように、ガラス基板 12 上に、走査線、データライン及び電流供給ラインが碁盤目状に形成されており、碁盤目状を形成する走査線等に接続され、各碁盤目に配置された TFT 回路 40 と、TFT 回路 40 により駆動可能であり、各碁盤目中に配置された正極 14（例えば ITO 電極）とを有し、正極 14 上に、互いに順番に平行に配置された帯状の青色発光用の有機薄膜層 24、緑色発光用の有機薄膜層 26 及び赤色発光用の有機薄膜層 28 を有し、青色発光用の有機薄膜層 24、緑色発光用の有機薄膜層 26 及び赤色発光用の有機薄膜層 28 上に、これらを全部覆うようにして配置された負極 22 を有してなる。青色発光用の有機薄膜層 24、緑色発光用の有機薄膜層 26 及び赤色発光用の有機薄膜層 28 は、それぞれ、正孔輸送層 16、発光層 18 及び電子輸送層 20 を有している。

【0080】前記アクティブマトリクスパネルにおいては、例えば、図 6 に示すように、複数平行に設けられた走査線 46 と、複数平行に設けられたデータライン 42 及び電流供給ライン 44 とが互いに直交して碁盤目を形成しており、各碁盤目には、スイッチング用 TFT 48 と、駆動用 TFT 50 とが接続されて回路が形成されている。駆動回路 38 から電流を印加すると、碁盤目毎にスイッチング用 TFT 48 と駆動用 TFT 50 とが駆動可能となっている。そして、各碁盤目は、青色発光用、緑色発光用及び赤色発光用の各有機薄膜素子 24、26 及び 28 が画素として機能し、該アクティブマトリクスパネルにおいて、横方向に配置された走査線 46 の 1 つと、縦方向に配置された電流供給ライン 44 とに対し、駆動回路 38 から電流を印加すると、その際、その交差点に位置するスイッチング用 TFT 48 が駆動し、それ

に伴い駆動用 TFT 50 が駆動し、該位置の有機 EL 素子 52 が発光する。この画素単位の発光を制御することにより、容易にフルカラーの画像を形成することができる。

【0081】また、本発明においては、図 3 及び図 5 における正孔輸送層 16 をバタニングせず、図 7 に示すように、青色発光用の有機薄膜層 24、緑色発光用の有機薄膜層 26 及び赤色発光用の有機薄膜層 28 で共有させた構造も好ましい。この構造の場合、正孔輸送層 16 のバタニングが不要であり構造が簡単で製造が容易であり、正極・負極の短絡も防ぐことができる点で有利である。

【0082】本発明の有機 EL ディスプレイは、例えば、コンピュータ、車載用表示器、野外表示器、家庭用機器、業務用機器、家電用機器、交通関係表示器、時計表示器、カレンダー表示器、ルミネッセントスクリーン、音響機器等をはじめとする各種分野において好適に使用することができる。

【0083】

【実施例】以下、本発明の実施例を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に何ら限定されるものではない。

【0084】（実施例 1）1, 3, 6, 8 - テトラフェニルピレンと 4, 4' - ビス(9 - カルバゾリル) - ビフェニル(CBP)とを発光層に用いた積層型の有機 EL 素子を以下のようにして作製した。即ち、正極としての ITO 電極を形成したガラス基板を、水、アセトン及びイソプロピルアルコールにて超音波洗浄し、UV オゾン処理した後、真空蒸着装置（真空度 =  $1 \times 10^{-6}$  Torr ( $1.3 \times 10^{-4}$  Pa)、基板温度 = 室温）を用いて、この ITO 電極上に正孔注入層としての前記 m-MTDATA を厚みが 30 nm となるように被覆した。次に、該正孔注入層上に正孔輸送層としての前記 NPD を厚みが 20 nm となるように被覆した。次に、この NPD による正孔輸送層上に、1, 3, 6, 8 - テトラフェニルピレンと 4, 4' - ビス(9 - カルバゾリル) - ビフェニル(CBP)とを、該 1, 3, 6, 8 - テトラフェニルピレン 10 分子(10 モル、10 質量%)に対し該 CBP 90 分子(90 モル、90 質量%)となるようにして、厚みが 30 nm の発光層を同時蒸着により形成した。そして、該発光層上に正孔ブロッキング層としての前記 BCP を厚みが 10 nm となるようにして被覆した。更に、該正孔ブロッキング層上に電子輸送層としての前記 Alq を厚みが 20 nm となるように被覆し、該 Alq による前記電子輸送層上に負極としての Al-Li 合金(Li の含有量 = 0.5 質量%)を厚みが 80 nm となるように蒸着した。以上により、有機 EL 素子を作製した。

【0085】作製した有機 EL 素子における、ITO 電極(正極)及び Al-Li 合金(負極)に電圧を印加す

ると、該有機EL素子においては、電圧4V以上で青色発光が観測され、印加電圧10Vにおいて発光輝度 $2100\text{cd/m}^2$ の高純度の青色発光(EL発光のCIE色座標:  $x = 0.162$ 、 $y = 0.082$ )が観測された。なお、この有機EL素子による発光スペクトルは、図8に示す通り、ゲスト材料である1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン本来の発光スペクトルと同様の発光スペクトルであった。

【0086】(実施例2)実施例1において、1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレンと4, 4'-ビス(9-カルバゾリル)-ピフェニル(CBP)との蒸着比を、該1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン1分子(1モル、1質量%)に対し該CBP99分子(99モル、99質量%)に代えた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。作製した有機EL素子における、ITO電極(正極)及びAl-Li合金(負極)に電圧を印加すると、該有機EL素子においては、電圧5V以上で青色発光が観測され、印加電圧10Vにおいて発光輝度 $850\text{cd/m}^2$ の高純度の青色発光(EL発光のCIE色座標:  $x = 0.161$ 、 $y = 0.072$ )が観測された。

【0087】(実施例3)実施例1において、1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレンと4, 4'-ビス(9-カルバゾリル)-ピフェニル(CBP)との蒸着比を、該1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン5分子(5モル、5質量%)に対し該CBP95分子(95モル、95質量%)に代えた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。作製した有機EL素子における、ITO電極(正極)及びAl-Li合金(負極)に電圧を印加すると、該有機EL素子においては、電圧4V以上で青色発光が観測され、印加電圧10Vにおいて発光輝度 $1580\text{cd/m}^2$ の高純度の青色発光(EL発光のCIE色座標:  $x = 0.159$ 、 $y = 0.070$ )が観測された。

【0088】(実施例4)実施例1において、1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレンと4, 4'-ビス(9-カルバゾリル)-ピフェニル(CBP)との蒸着比を、該1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン20分子(20モル、20質量%)に対し該CBP80分子(80モル、80質量%)に代えた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。作製した有機EL素子における、ITO電極(正極)及びAl-Li合金(負極)に電圧を印加すると、該有機EL素子においては、電圧4V以上で青色発光が観測され、印加電圧10Vにおいて発光輝度 $2630\text{cd/m}^2$ の高純度の青色発光(EL発光のCIE色座標:  $x = 0.163$ 、 $y = 0.098$ )が観測された。

【0089】(比較例1)実施例2において、4, 4'-ビス(9-カルバゾリル)-ピフェニル(CBP)を前記NPDに代え、正孔輸送層を設けず発光層を正孔輸

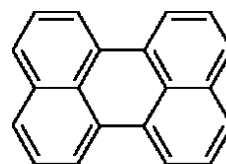
\*送層兼発光層としたこと以外は、実施例2と同様にして有機EL素子を作製した。

【0090】作製した有機EL素子における、ITO電極(正極)及びAl-Li合金(負極)に電圧を印加すると、該有機EL素子においては、電圧5V以上で青色発光が観測され、印加電圧10Vにおいて発光輝度 $650\text{cd/m}^2$ の青色発光(EL発光のCIE色座標:  $x = 0.168$ 、 $y = 0.152$ )が観測された。なお、この有機EL素子による発光スペクトルは、図9に示す通り、ゲスト材料である1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン本来の発光スペクトルとは異なり、スペクトルバンド幅の広い発光スペクトルであった。また、この有機EL素子による発光は、実施例1~4の場合に比べて発光輝度、色純度共に劣化していた。

【0091】(比較例2)実施例2において、1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレンを下記構造式で表されるペリレンに代えた以外は、実施例2と同様にして有機EL素子を作製した。

【0092】

【化16】



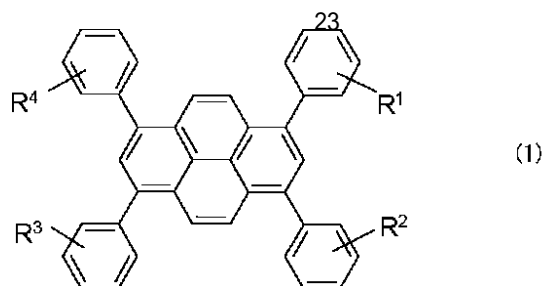
ペリレン

【0093】作製した有機EL素子における、ITO電極(正極)及びAl-Li合金(負極)に電圧を印加すると、該有機EL素子においては、電圧6V以上で青色発光が観測され、印加電圧10Vにおいて発光輝度 $115\text{cd/m}^2$ の青色発光(EL発光のCIE色座標:  $x = 0.201$ 、 $y = 0.293$ )が観測された。なお、この有機EL素子による発光スペクトルは、図10に示す通り、ゲスト材料であるペリレン本来の発光スペクトルとは異なり、ペリレン本来の発光波長である450~530nmに加えて、更に長波長側にペリレンの会合体からの効率の悪い発光成分を有していた。また、この有機EL素子では、「濃度消光」現象が観られ、実施例1~4の場合に比べて大幅に発光輝度、色純度が低下していた。

【0094】ここで、本発明の好ましい態様を付記すると、以下の通りである。

(付記1) 正極及び負極の間に、発光層を含む有機薄膜層を有してなり、該有機薄膜層における一層が、下記構造式(1)で表される1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物と、下記構造式(2)で表されるカルバゾール誘導体とを含有することを特徴とする有機EL素子。

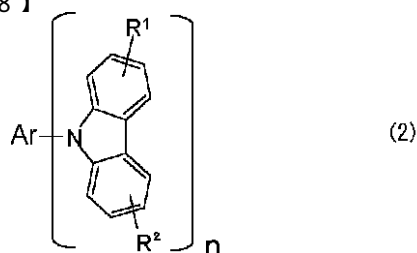
【化17】



(1)

ただし、前記構造式(1)中、 $R^1 \sim R^4$ は、互いに同一であってもよいし異なってもよく、水素原子又は置換基を表す。

## 【化18】



(2)

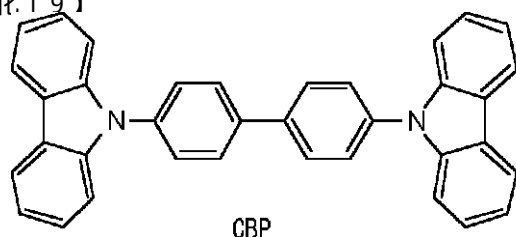
ただし、前記構造式(2)中、 $Ar$ は、多価の芳香族基又は複素環式芳香族基を表し、 $R^1$ 及び $R^2$ は、互に同一であってもよいし異なってもよく、水素原子又は置換基を表し、 $n$ は、整数を表す。

(付記2) 発光層が、構造式(1)で表される1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物と、構造式(2)で表されるカルバゾール誘導体とを含有する付記1に記載の有機EL素子。

(付記3) 構造式(1)における置換基が、更に置換基を有していてもよい、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基であり、構造式(2)における置換基が、ハロゲン原子、又は、更に置換基を有していてもよい、アルキル基、アルキルスルホニル基、アラルキル基、アルケニル基、水酸基、シアノ基、アミノ基、アミド基、アシル基、カルボキシ基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基、アリール基、アリールオキシ基、芳香族炭化水素基若しくは芳香族複素環基である付記1又は2に記載の有機EL素子。

(付記4) 構造式(2)で表されるカルバゾール誘導体が、下記構造式で表される4,4'-ビス(9-カルバゾリル)-ビフェニル(CBP)又はその誘導体である付記1から3のいずれかに記載の有機EL素子。

## 【化19】



CBP

(付記5) 構造式(1)で表される1, 3, 6, 8-

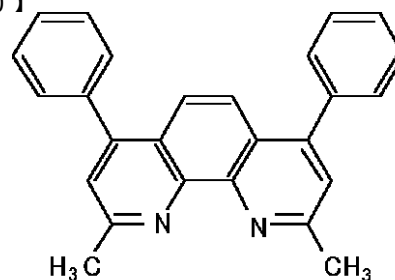
テトラフェニルピレン化合物を含有する層における該1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物の含有量が、0.1~50質量%である付記1から4のいずれかに記載の有機EL素子。

(付記6) 構造式(1)で表される1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物を含有する層における該1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物の含有量が、5~30質量%である付記1から4のいずれかに記載の有機EL素子。

(付記7) 構造式(1)で表される1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物を含有する層と負極との間に、正孔ブロッキング層を有してなる付記1から6のいずれかに記載の有機EL素子。

(付記8) 正孔ブロッキング層が、下記構造式で表される2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン(バソクプロイン;BCP)を含有してなる付記1から7のいずれかに記載の有機EL素子。

## 【化20】



BCP

(付記9) EL発光のCIE色座標が $y < 0.12$ である付記1から8のいずれかに記載の有機EL素子。

(付記10) 発光層の厚みが5~50nmである付記1から9のいずれかに記載の有機EL素子。

(付記11) 青色発光用である付記1から10のいずれかに記載の有機EL素子。

(付記12) 付記1から11のいずれかに記載の有機EL素子を用いたことを特徴とする有機ELディスプレイ。

(付記13) 青色発色用有機EL素子、緑色発色用有機EL素子及び赤色発色用有機EL素子を有し、該青色発色用有機EL素子が付記1から11のいずれかに記載の有機EL素子であり、該青色発色用有機EL素子、該緑色発色用有機EL素子及び該赤色発色用有機EL素子が同一の正孔注入層及び正孔輸送層の少なくとも一方を共有してなる付記12に記載の有機ELディスプレイ。

(付記14) パッシブマトリクスパネル及びアクティブマトリクスパネルのいずれかである付記12又は13に記載の有機ELディスプレイ。

## 【0095】

【発明の効果】本発明によると、従来における前記問題を解決し、青色光の発光効率・発光輝度・色純度等に優

れた有機EL素子、及び、該有機EL素子を用いた高性能な有機ELディスプレイを提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の有機EL素子における層構成の一例を説明するための概略説明図である。

【図2】図2は、本発明の有機EL素子における層構成の他の例を説明するための概略説明図である。

【図3】図3は、パッシブマトリクス方式の有機ELディスプレイ（パッシブマトリクスパネル）の一構造例を説明するための概略説明図である。

【図4】図4は、図3に示すパッシブマトリクス方式の有機ELディスプレイ（パッシブマトリクスパネル）における回路を説明するための概略説明図である。

【図5】図5は、アクティブマトリクス方式の有機ELディスプレイ（アクティブマトリクスパネル）の一構造例を説明するための概略説明図である。

【図6】図6は、図5に示すアクティブマトリクス方式の有機ELディスプレイ（アクティブマトリクスパネル）における回路を説明するための概略説明図である。

【図7】図7は、正孔注入層及び正孔輸送層を各色の有機EL素子で共有させた態様の有機ELディスプレイを説明するための概略説明図である。

【図8】図8は、実施例1の有機EL素子の発光スペクトルを示すグラフである。

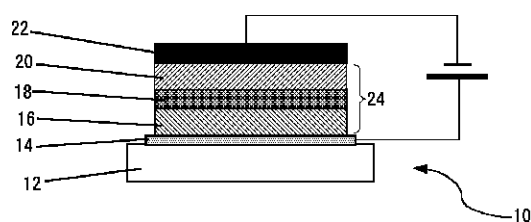
【図9】図9は、比較例1の有機EL素子の発光スペクトルを示すグラフである。

\*【図10】図10は、比較例2の有機EL素子の発光スペクトルを示すグラフである。

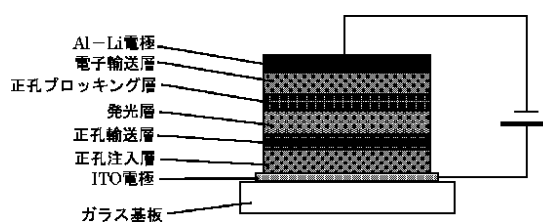
【符号の説明】

1	有機ELディスプレイ
10	有機EL素子
12	ガラス基板
14	正極
16	正孔輸送層
18	発光層
20	電子輸送層
22	負極
24	青色発光用の有機薄膜層
26	緑色発光用の有機薄膜層
28	赤色発光用の有機薄膜層
30	正極ライン
32	負極ライン
34	有機EL素子
36	定電流源
38	駆動回路
40	TFT回路
42	データライン
44	電源供給ライン
46	走査線
48	スイッチング用TFT
50	駆動用TFT
52	有機EL素子

【図1】

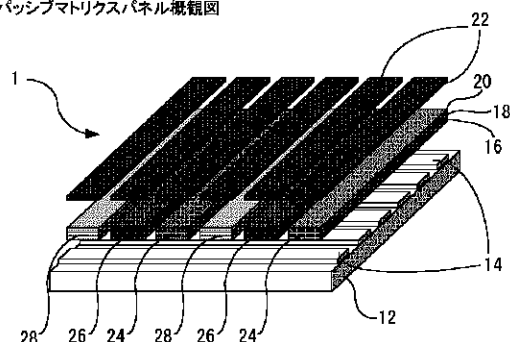


【図2】



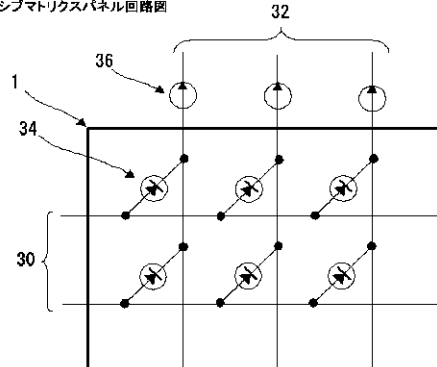
【図3】

パッシブマトリクスパネル概観図

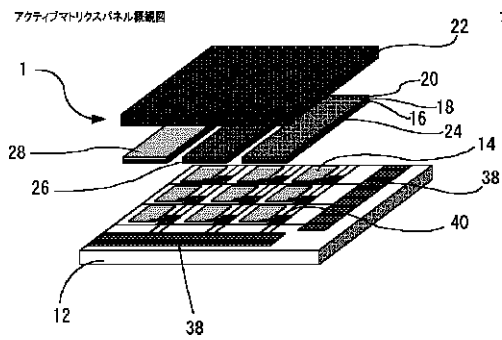


【図4】

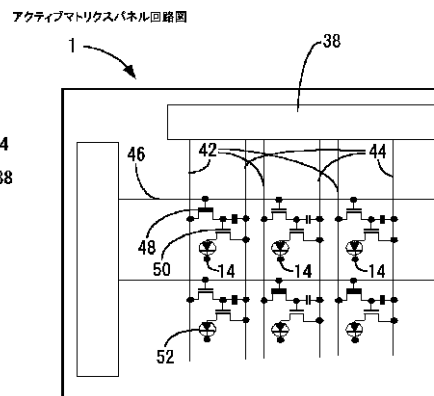
パッシブマトリクスパネル回路図



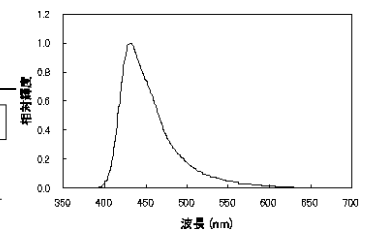
【図5】



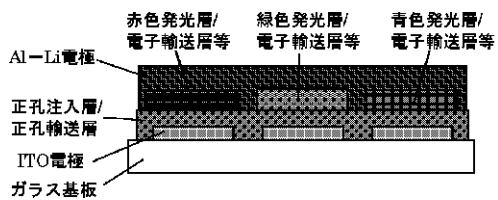
【図6】



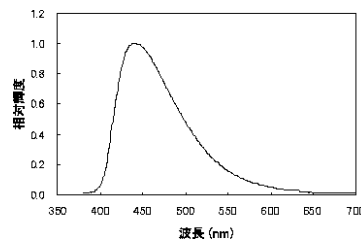
【図8】



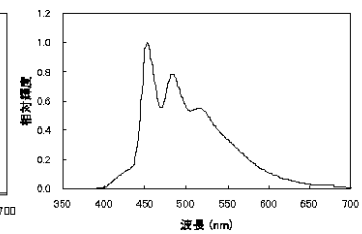
【図7】



【図9】



【図10】



フロントページの続き

(72)発明者 児玉 淳  
神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番  
1号 富士通株式会社内

(72)発明者 岡本 康男  
神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番  
1号 富士通株式会社内  
Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 CB04 DB03

专利名称(译)	有机EL元件和有机EL显示器		
公开(公告)号	<a href="#">JP2003234190A</a>	公开(公告)日	2003-08-22
申请号	JP2002029335	申请日	2002-02-06
[标]申请(专利权)人(译)	富士通株式会社		
申请(专利权)人(译)	富士通株式会社		
[标]发明人	木下正兒 外山弥 児玉淳 岡本康男		
发明人	木下 正兒 外山 弥 児玉 淳 岡本 康男		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 H01L51/00 H01L51/30 H05B33/14 H05B33/22		
CPC分类号	C09K11/06 C09K2211/1003 C09K2211/1011 C09K2211/1022 C09K2211/1029 H01L51/0054 H01L51/0059 H01L51/006 H01L51/0071 H01L51/0081 H01L51/5012 H01L51/5096 Y10S428/917		
FI分类号	H05B33/14.B C09K11/06.610 C09K11/06.690 H05B33/22.B		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB03 3K007/AB04 3K007/CB04 3K007/DB03 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/CC06 3K107/CC07 3K107/DD59 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD78 3K107/FF13		
代理人(译)	广田幸一		
其他公开文献	JP3841695B2		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

#### 摘要(译)

解决的问题：提供蓝色发光效率，发光亮度，色纯度等优异的有机EL元件。在正极和负极之间设置有具有发光层的有机薄膜层，该有机薄膜层的一层由结构式(1)表示。含有苯基device化合物和结构式(2)表示的咔唑衍生物的有机EL元件。[化学1]然而，在结构式(1)中，R<sup>1</sup>至R<sup>4</sup>可以彼此相同或不同，并且表示氢原子或取代基。[化学2]然而，在结构式(2)中，Ar表示多价芳族基团或杂环芳族基团，R<sup>1</sup>和R<sup>2</sup>可以彼此相同或不同。可以表示氢原子或取代基，n表示整数。由结构式(2)表示的咔唑衍生物或其衍生物优选为由以下结构式表示的4,4'-双(9-咔唑基)-联苯(CBP)。

#### 【化1】

