

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第7部門第2区分

【発行日】平成25年12月12日(2013.12.12)

【公開番号】特開2012-104525(P2012-104525A)

【公開日】平成24年5月31日(2012.5.31)

【年通号数】公開・登録公報2012-021

【出願番号】特願2010-249205(P2010-249205)

【国際特許分類】

H 01 L 51/50 (2006.01)

H 05 B 33/10 (2006.01)

H 05 B 33/12 (2006.01)

C 09 K 11/06 (2006.01)

【F I】

H 05 B 33/14 B

H 05 B 33/10

H 05 B 33/22 B

H 05 B 33/12 B

C 09 K 11/06 6 6 0

C 09 K 11/06 6 9 0

【手続補正書】

【提出日】平成25年10月29日(2013.10.29)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

基板に、複数の有機EL素子の各々ごとに設けられた複数の下部電極と、

前記下部電極の上に前記有機EL素子ごとに設けられた正孔注入または正孔輸送の少なくとも一方の特性を有する複数の正孔注入・輸送層と、

前記正孔注入・輸送層上に前記有機EL素子ごとに設けられると共に、低分子材料を含む複数の有機発光層と、

前記複数の有機発光層上の全面に設けられた電子注入または電子輸送の少なくとも一方の特性を有する電子注入・輸送層と、

前記電子注入・輸送層上に設けられた上部電極と

を備えた有機EL表示装置。

【請求項2】

前記複数の有機発光層と前記電子注入・輸送層との間に設けられると共に、ホールプロック特性を有するホールプロック層を備えた、請求項1に記載の有機EL表示装置。

【請求項3】

前記有機発光層は前記低分子材料と共に高分子材料を含み、前記低分子材料は分子量が300以上1万以下の化合物である、請求項1に記載の有機EL表示装置。

【請求項4】

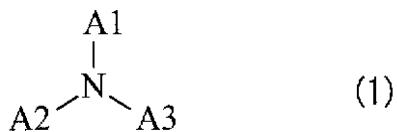
前記有機発光層に含まれる前記高分子材料と前記低分子材料との分子量比(高分子材料/低分子材料)は10以上である、請求項3に記載の有機EL表示装置

【請求項5】

前記低分子材料は、式(1)で表わされる化合物である、請求項1に記載の有機EL表

示装置。

【化1】

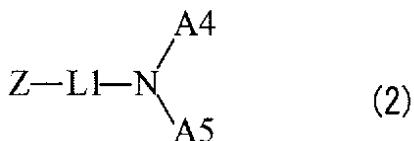


(A1 ~ A3は芳香族炭化水素基、複素環基またはそれらの誘導体である。)

【請求項6】

前記低分子材料は、式(2)で表される（但し、式(1)に含まれる化合物を除く）化合物である、請求項1に記載の有機EL表示装置。

【化2】

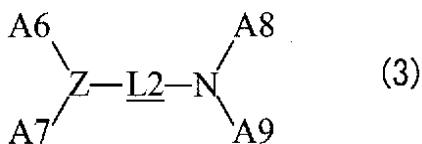


(Zは含窒素炭化水素基あるいはその誘導体である。L1は2価の芳香族環基が1ないし4個結合した基、具体的には1~4個の芳香族環が連結した2価の基、またはその誘導体である。A4およびA5は、芳香族炭化水素基あるいは芳香族複素環基、またはその誘導体である。但し、A4およびA5は互いに結合して環状構造を形成してもよい。)

【請求項7】

前記低分子材料は、式(3)で表わされる（但し、式(1)に含まれる化合物を除く）化合物である、請求項1記載の有機EL表示装置。

【化3】

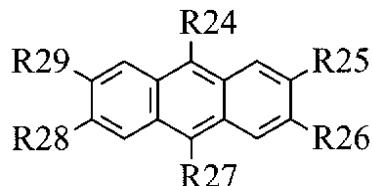


(L2は2価の芳香族環基が2ないし6個結合した基である。具体的には2~6個の芳香族環が連結した2価の基、またはその誘導体である。A6~A9は、芳香族炭化水素基あるいは複素環基、またはその誘導体が1~10個結合した基である。)

【請求項8】

前記低分子材料は、式(4)で表わされる化合物により構成されている、請求項1に記載の有機EL表示装置。

【化4】



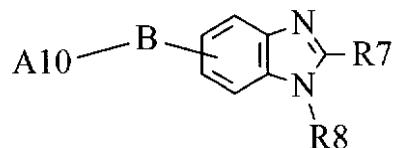
(R24~R29は、水素原子、ハロゲン原子、水酸基、シアノ基、ニトロ基、または炭素数20以下のカルボニル基を有する基、カルボニルエステル基を有する基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシル基あるいはそれらの誘導体、炭素数30以下のシリル基を有する基、アリール基を有する基、複素環基を有する基、アミノ基を有する基あるいはそ

れらの誘導体である。)

【請求項 9】

前記低分子材料は、式(5)で表わされる化合物により構成されている、請求項1に記載の有機EL表示装置。

【化5】

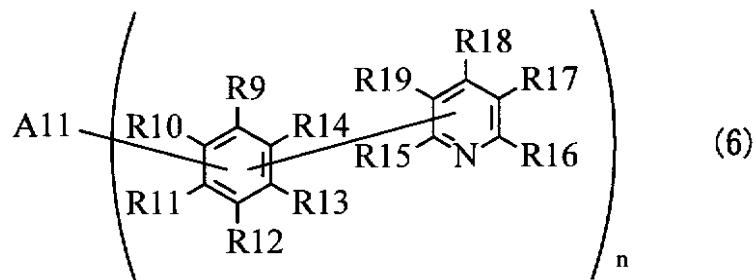


(A10は水素原子あるいはハロゲン原子、炭素数1～20個のアルキル基、3～40個の芳香族環が縮合した多環芳香族炭化水素基を有する炭素数6～60個の炭化水素基または含窒素複素環基あるいはそれらの誘導体である。Bは単結合、2価の芳香族環基あるいはその誘導体である。R7、8は各々独立して水素原子あるいはハロゲン原子、炭素数1～20個のアルキル基、炭素数6～60個の芳香族炭化水素基、含窒素複素環基または炭素数1～20個のアルコキシ基あるいはそれらの誘導体である。)

【請求項 10】

前記低分子材料は、式(6)で表わされる化合物により構成されている、請求項1に記載の有機EL表示装置。

【化6】

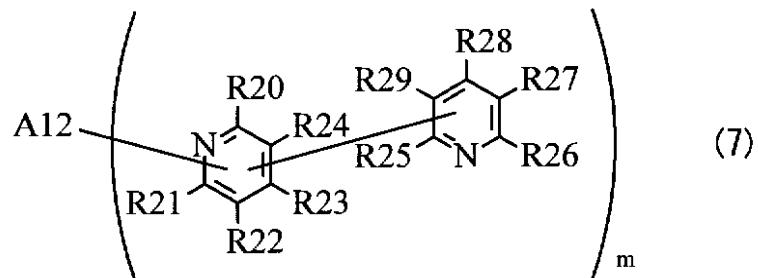


(A11は芳香族環が2ないし5個縮合したn価の基である。具体的には3個の芳香族環が縮合したn価のアセン系芳香族環基、またはその誘導体である。R9～R14は各々独立して水素原子あるいはハロゲン原子、A11またはR15～R19のいずれか1つに結合する遊離原子価である。R15～R19は各々独立して水素原子、ハロゲン原子またはR9～R14のいずれか1つに結合する遊離原子価である。nは2以上の整数であり、n個のピリジルフェニル基は同一でもよく、異なっていてもよい。)

【請求項 11】

前記低分子材料は、式(7)で表わされる化合物により構成されている、請求項1に記載の有機EL表示装置。

【化7】



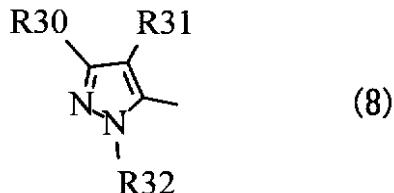
(A3は芳香族環が2ないし5個縮合したm価の基である。具体的には3個の芳香族環が

縮合した m 値のアセン系芳香族環基、またはその誘導体である。R₂₀～R₂₄ は各々独立して水素原子あるいはハロゲン原子、A₁₂ または R₂₅～R₂₉ のいずれか 1 つに結合する遊離原子価である。R₂₅～R₂₉ は各々独立して水素原子、ハロゲン原子または R₂₀～R₂₄ のいずれか 1 つに結合する遊離原子価である。m は 2 以上の整数であり、m 個のビピリジル基は同一でもよく、異なっていてもよい。)

【請求項 12】

前記低分子材料は、式(8)で表わされる化合物により構成されている、請求項 1 に記載の有機 EL 表示装置。

【化 8】



(R₃₀～R₃₂ は水素原子、1～3 個の芳香族環が縮合した芳香族炭化水素基あるいはそれらの誘導体、炭素数 1～6 個の炭化水素基を有する 1～3 個の芳香族環が縮合した芳香族炭化水素基あるいはそれらの誘導体、炭素数 6～12 個の芳香族炭化水素基を有する 1～3 個の芳香族環が縮合した芳香族炭化水素基あるいはそれらの誘導体である。)

【請求項 13】

前記低分子材料は、錯体形成可能な金属元素としてベリリウム(Be)、ホウ素(B)、亜鉛(Zn)、カドミウム(Cd)、マグネシウム(Mg)、金(Au)、銀(Ag)、パラジウム(Pd)、白金(Pl)、アルミニウム(Al)、ガドリニウム(Ga)、イットリウム(Y)、スカンジウム(Sc)、ルテニウム(Ru)、ロジウム(Rh)、オスミウム(Os)、イリジウム(Ir)のうちの少なくとも 1 種を含む、請求項 1 に記載の有機 EL 表示装置。

【請求項 14】

前記ホールブロック層に用いられる化合物は、電子移動度が $1.0 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{V s}$ 以上 $1.0 \times 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{V s}$ 以下である、請求項 1 または 9 乃至 11 のいずれか 1 項に記載の有機 EL 表示装置。

【請求項 15】

前記ホールブロック層は、HOMO(最高被占軌道)とLUMO(最低空軌道)との準位間のギャップが 3.0 以上 3.8 以下である、請求項 2 に記載の有機 EL 表示装置。

【請求項 16】

前記有機 EL 素子は、赤色有機 EL 素子、緑色有機 EL 素子、青色有機 EL 素子、黄色有機 EL 素子または白色有機 EL 素子のうちの少なくとも 1 種である、請求項 1 または 2 に記載の有機 EL 表示装置。

【請求項 17】

基板に複数の下部電極を複数の有機 EL 素子の各々ごとに形成する工程と、

前記下部電極上に正孔注入または正孔輸送の少なくとも一方の特性を有する複数の正孔注入・輸送層を前記有機 EL 素子ごとに塗付法により形成する工程と、

前記正孔注入・輸送層上に低分子材料を含む複数の有機発光層を前記有機 EL 素子ごとに塗付法により形成する工程と、

前記複数の有機発光層の全面に電子注入または電子輸送の少なくとも一方の特性を有する電子注入・輸送層を蒸着法により形成する工程と、

前記電子注入・輸送層の全面に上部電極を形成する工程と

を含む有機 EL 表示装置の製造方法。

【請求項 18】

前記複数の有機発光層と前記電子注入・輸送層との間に設けられると共に、ホールブロック特性を有するホールブロック層を蒸着法により形成する、請求項17に記載の有機EL表示装置の製造方法。

【請求項19】

前記塗付法として、吐出方式、印刷方式または噴霧方式を用いる、請求項17に記載の有機EL表示装置の製造方法。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0045

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0045】

また、上記以外の発光ユニットとしては、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ビレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリンオキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、キナクリドン、ルブレン等の芳香族炭化水素、または複素環式化合物が挙げられる。更に、三重項励起状態を伴う発光ユニットを用いることができる。三重項励起状態を伴う発光ユニットとしては、イリジウム金属錯体等の金属錯体を含む化合物が多いが、金属錯体の含有も含めこの限りではない。三重項励起状態から発光する高分子発光材料の具体例としては、赤色りん光発光材料としてRPP(式(3-1))、緑色りん光発光材料としてGPP(式(3-2))、青色りん光発光材料としてBPP(式(3-3))等が挙げられる。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0048

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0048】

高分子材料のみから構成される赤色発光層16CR、緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBの上部に低分子材料からなる電子輸送層16Dを形成した場合には、赤色発光層16CR、緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBのエネルギー準位と、電子輸送層16Dのエネルギー準位との差は大きい。このため、電子輸送層16Dと赤色発光層16CR、緑色発光層16CGおよび青色発光層16CB各々との間の正孔または電子の注入効率は非常に低く、前述のように、本来の高分子材料からなる発光層が有する特性を十分に得ることができないという問題があった。本実施の形態では、この正孔または電子の注入特性を向上させるために、赤色発光層16CR、緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBが有するエネルギー準位と、電子輸送層16Dが有するエネルギー準位との差を小さくする低分子材料(モノマーまたはオリゴマー)を赤色発光層16CR、緑色発光層16DGおよび青色発光層16CBに添加するものである。ここでは、赤色発光層16CR、緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBの最高占有分子軌道(Highest Occupied Molecular Orbital; HOMO)準位および最低非占有分子軌道(Lowest Unoccupied Molecular Orbital; LUMO)準位と、電子輸送層16DのHOMO(最高占有分子軌道)準位および最低非占有分子軌道(LUMO)準位と赤色発光層16CR、緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBに添加する低分子材料のHOMO(最高占有分子軌道)準位および最低非占有分子軌道(LUMO)準位との関係を考慮する。具体的には、添加する低分子材料として、赤色発光層16CRまたは緑色発光層16CGそれぞれ

のLUMOより深い値を有すると共に、電子輸送層16DのLUMOより浅い値を有し、かつ、赤色発光層16CR、緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBそれぞれのHOMOより深い値を有すると共に、電子輸送層16DのHOMOより浅い値を有する化合物を選択する。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

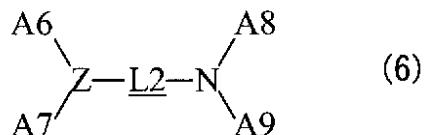
【補正対象項目名】0057

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0057】

【化7】



(L2は2価の芳香族環基が2ないし6個結合した基である。具体的には2~6個の芳香族環が連結した2価の基、またはその誘導体である。A6~A9は、芳香族炭化水素基あるいは複素環基、またはその誘導体が1~10個結合した基である。)

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

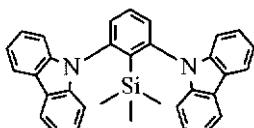
【補正対象項目名】0075

【補正方法】変更

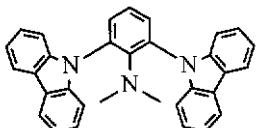
【補正の内容】

【0075】

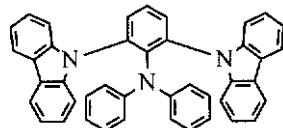
【化23】



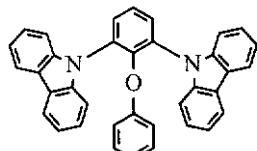
(5-159)



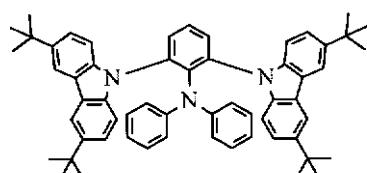
(5-160)



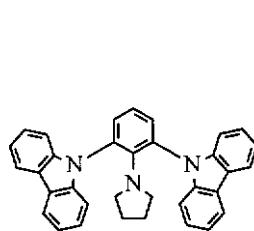
(5-161)



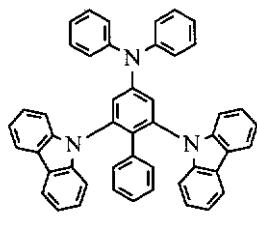
(5-162)



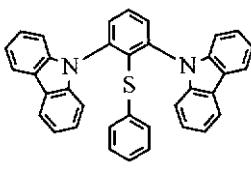
(5-163)



(5-164)



(5-165)



(5-166)

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

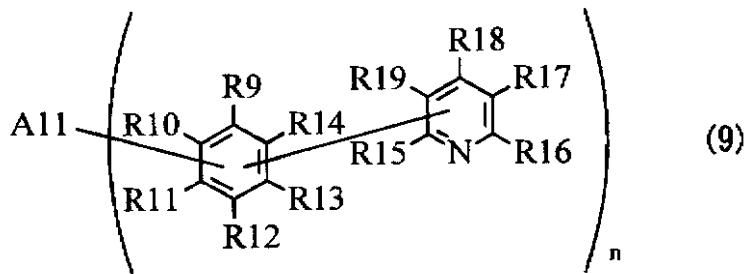
【補正対象項目名】0092

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 9 2】

【化 3 3】



(A11は芳香族環が2ないし5個縮合したn価の基である。具体的には3個の芳香族環が縮合したn価のアセン系芳香族環基、またはその誘導体である。R9～R14は各々独立して水素原子あるいはハロゲン原子、A11またはR15～R19のいずれか1つに結合する遊離原子価である。R15～R19は各々独立して水素原子、ハロゲン原子またはR9～R14のいずれか1つに結合する遊離原子価である。nは2以上の整数であり、n個のピリジルフェニル基は同一でもよく、異なっていてもよい。)

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

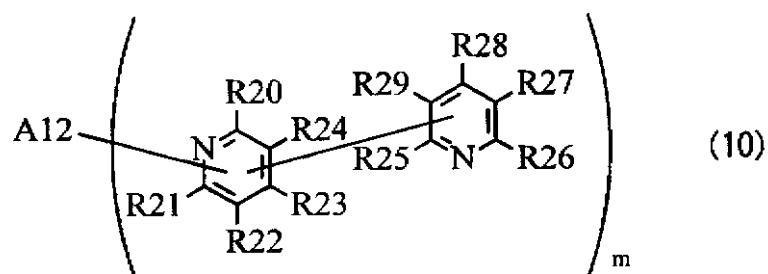
【補正対象項目名】0 0 9 3

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 9 3】

【化 3 4】



(A12は芳香族環が2ないし5個縮合したm価の基である。具体的には3個の芳香族環が縮合したm価のアセン系芳香族環基、またはその誘導体である。R20～R24は各々独立して水素原子あるいはハロゲン原子、A12またはR25～R29のいずれか1つに結合する遊離原子価である。R25～R29は各々独立して水素原子、ハロゲン原子またはR20～R24のいずれか1つに結合する遊離原子価である。mは2以上の整数であり、m個のビピリジル基は同一でもよく、異なっていてもよい。)

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

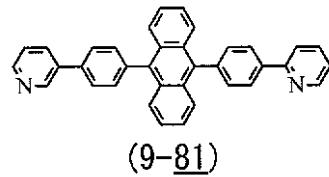
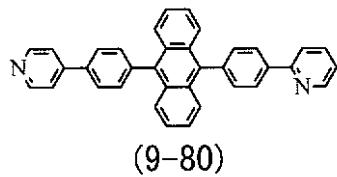
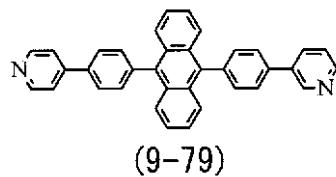
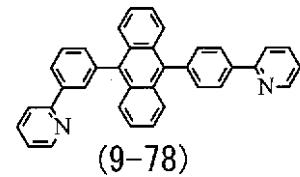
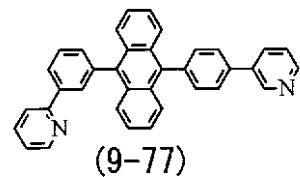
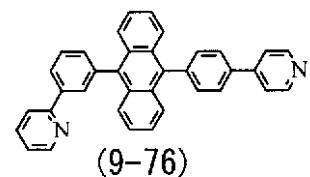
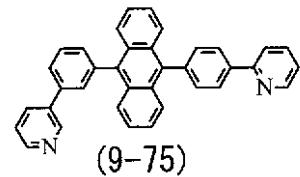
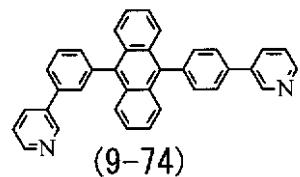
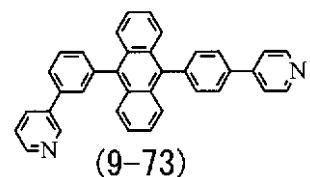
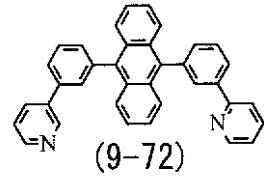
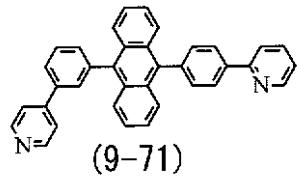
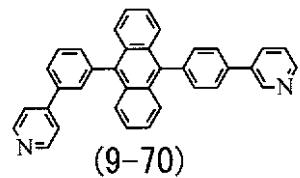
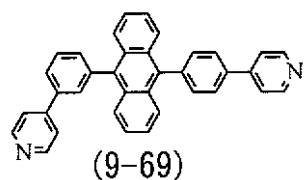
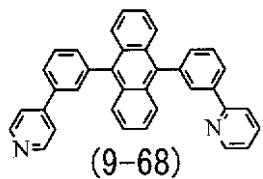
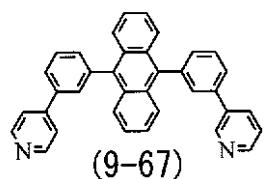
【補正対象項目名】0 1 0 6

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 1 0 6】

【化45】



【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0118

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0118】

電子輸送層16Dは、赤色発光層16CR，緑色発光層16CG，青色発光層16CBへの電子輸送効率を高めるためのものであり、発光層16CR，16CG，16CBの全面に共通層として設けられている。電子輸送層16Dの厚みは素子の全体構成にもよるが、例えば5nm～300nmであることが好ましく、さらに好ましくは10nm～170nmである。

【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0123

【補正方法】変更

【補正の内容】**【0 1 2 3】**

更に、上部電極17は、アルミキノリン錯体、スチリルアミン誘導体、フタロシアニン誘導体等の有機発光材料を含有した混合層でもよい。この場合には、さらにMgAgのような光透過性を有する層を別途有していてもよい。なお、上部電極17は、アクティブマトリックス駆動方式の場合、有機層16と隔壁15とによって、下部電極14と絶縁された状態で基板11上にベタ膜状に形成され、赤色有機EL素子10R、緑色有機EL素子10G、青色有機EL素子10Bの共通電極として用いられる。

【手続補正11】**【補正対象書類名】明細書****【補正対象項目名】0 1 4 1****【補正方法】変更****【補正の内容】****【0 1 4 1】**

(正孔輸送層16BR, 16BG, 16BBを形成する工程)

正孔注入層16AR, 16AG, 16ABを形成したのち、図5(C)に示したように、正孔注入層16AR, 16AG, 16ABの上に、上述した高分子材料を含む正孔輸送層16BR, 16BG, 16BBを赤色有機EL素子10R、緑色有機EL素子10Gおよび青色有機EL素子10Bの各々ごとに形成する(ステップS105)。この正孔輸送層16BR, 16BG, 16BBは、スピンドルコート法や液滴吐出法などの塗布法により形成する。特に、上部隔壁15Bに囲まれた領域に正孔輸送層16BR, 16BG, 16BBの形成材料を選択的に配する必要上、液滴吐出法であるインクジェット方式や、ノズルコート方式を用いることが好ましい。

【手続補正12】**【補正対象書類名】明細書****【補正対象項目名】0 1 4 2****【補正方法】変更****【補正の内容】****【0 1 4 2】**

具体的には、例えばインクジェット方式により、正孔輸送層16BR, 16BG, 16BBの形成材料である高分子ポリマーおよび低分子材料の混合溶液または分散液を正孔注入層16AR, 16AG, 16ABの露出面上に配する。その後、熱処理(乾燥処理)を行うことにより、赤色有機EL素子10R、緑色有機EL素子10Gおよび青色有機EL素子10Bの正孔輸送層16BR, 16BG, 16BBを形成する。

【手続補正13】**【補正対象書類名】明細書****【補正対象項目名】0 1 4 3****【補正方法】変更****【補正の内容】****【0 1 4 3】**

熱処理においては、溶媒または分散媒を乾燥後、高温で加熱する。塗布する雰囲気や溶媒を乾燥、加熱する雰囲気としては、窒素(N₂)を主成分とする雰囲気中が好ましい。酸素や水分があると、作成された有機EL表示装置の発光効率や寿命が低下する虞がある。特に、加熱工程においては、酸素や水分の影響が大きいため、注意が必要である。酸素濃度は、0.1ppm以上100ppm以下が好ましく、50ppm以下であればより好ましい。100ppmより多い酸素があると、形成した薄膜の界面が汚染され、得られた有機EL表示装置の発光効率や寿命が低下する虞がある。また、0.1ppm未満の酸素濃度の場合、素子の特性は問題ないが、現状の量産のプロセスとして、雰囲気を0.1ppm未満に保持するための装置コストが多大になる可能性がある。

【手続補正14】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0146

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0146】

(赤色発光層16CR, 緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBを形成する工程)

赤色有機EL素子10R, 緑色有機EL素子10Gおよび青色有機EL素子10Bの正孔輸送層16BR, 16BG, 16BBを形成したのち、図5(D)に示したように、赤色有機EL素子10Rの正孔輸送層16BRの上に上述した高分子材料および低分子材料の混合材料よりなる赤色発光層16CRを形成する。また、同様に緑色有機EL素子10Gおよび青色有機EL素子10Bの正孔輸送層16BG, 16BBの上にそれぞれ上述した高分子材料および低分子材料の混合材料よりなる緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBを形成する(ステップS106)。赤色発光層16CR, 緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBは、スピンドルコート法や液滴吐出法などの塗布法により形成する。特に、上部隔壁15Bに囲まれた領域に赤色発光層16CR, 緑色発光層16CGおよび青色発光層16CBの形成材料を選択的に配する必要上、液滴吐出法であるノズルコート方式や、インクジェット方式を用いることが好ましい。

【手続補正15】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0164

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0164】

具体的には、赤色有機EL素子20Rの有機層26は、例えば、第1の実施の形態における赤色有機EL素子10Rと同様に下部電極14の側から順に、正孔注入層26AR, 正孔輸送層26BR, 赤色発光層26CR, ホールブロック層26F, 電子輸送層26Dおよび電子注入層26Eを積層した構成を有する。緑色有機EL素子20G(および青色有機EL素子20B)の有機層26も赤色有機EL素子20Rと同様に、例えば、下部電極14の側から順に、正孔注入層26AG(26AB), 正孔輸送層26BG(26BB), 緑色発光層26CG(青色発光層26CB), ホールブロック層26F, 電子輸送層26Dおよび電子注入層26Eを積層した構成を有する。これらのうちホールブロック層26F, 電子輸送層26Dおよび電子注入層26Eは、赤色有機EL素子20R, 緑色有機EL素子20G, 青色有機EL素子20Bの共通層として設けられている。

【手続補正16】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0167

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0167】

ホールブロック層26Fに用いられる低分子材料としては、第1の実施の形態において説明した電子輸送層16Dに用いた低分子材料と同様に、電子移動度が $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{V s}$ 以上 $1.0 \times 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{V s}$ 以下の含窒素複素環誘導体を用いることができる。具体的には、上記の式(8)~式(10)で表わされるベンゾイミダゾール誘導体(式(8)), ピリジルフェニル誘導体(式(9)), ビピリジン誘導体(式(10))または、カルバゾール誘導体(式(5)), ピラゾール誘導体(式(11))等が挙げられる。特に、発光層26Cから電子輸送層26Dへの正孔の透過を効果的に抑えるために、HOMOとLUMOとの準位間のギャップが電子輸送層26Dよりも大きな、具体的には2.8以上3.5以下となる材料を用いることが好ましい。

【手続補正17】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0184

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0184】

続いて、正孔輸送層16BR, 16BG, 16BBを形成したのち、赤色有機EL素子10Rの正孔輸送層10BRの上に赤色発光層16CRを形成した。具体的にはイリジウム錯体を含む赤色発色の高分子材料RPP(式3-1)に、例えば式(4-23)に示した低分子材料を重量比2:1で添加し、キシレンもしくはキシレンより高い沸点の溶媒に溶解させた溶液もしくはインクで、60nmの厚みでノズルコート法により塗訳印刷した。また、緑色有機EL素子10Gおよび青色有機EL素子10Bの正孔輸送層16BG, 16BBの上に緑色発光層16CG, 青色発光層16CBを形成した。具体的には、それぞれイリジウム錯体を含む緑色発色の高分子材料GPP(式3-2)または青色発色の高分子材料BPP(式3-3)に例えば式(4-23)に示した低分子材料を重量比2:1で添加し、キシレンもしくはキシレンより高い沸点の溶媒に溶解させた溶液もしくはインクで、50nmの厚みでノズルコート法により塗訳印刷した。続いて、負圧の状態まで排気し、溶媒を真空乾燥させた後、130、30分で加熱処理した(ステップS106)。

【手続補正18】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0192

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0192】

続いて、正孔輸送層26BR, 26BG, 26BBを形成したのち、赤色有機EL素子20Rの正孔輸送層20BRの上に赤色発光層26CRを形成した。具体的にはイリジウム錯体を含む赤色発色の高分子材料RPP(式3-1)に、例えば式(4-13)に示した低分子材料を重量比2:1で添加し、キシレンもしくはキシレンより高い沸点の溶媒に溶解させた溶液もしくはインクで、60nmの厚みでノズルコート法により塗訳印刷した。また、緑色有機EL素子20Gおよび青色有機EL素子20Bの正孔輸送層26BG, 26BBの上に緑色発光層26CG, 青色発光層26CBを形成した。具体的には、それぞれイリジウム錯体を含む緑色発色の高分子材料GPP(式3-2)または青色発色の高分子材料BPP(式3-3)に例えば式(4-13)に示した低分子材料を重量比2:1で添加し、キシレンもしくはキシレンより高い沸点の溶媒に溶解させた溶液もしくはインクで、50nmの厚みでノズルコート法により塗訳印刷した。続いて、負圧の状態まで排気し、溶媒を真空乾燥させた後、130、30分で加熱処理した(ステップS106)。

【手続補正19】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0194

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0194】

まず、赤色発光層26CR, 緑色発光層26CG, 青色発光層26CBを形成したのち、蒸着法により、ホールブロック層26Fとして、フェナンスロリン誘導体である2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナンスロリン(BCP;式(13))を用いて真空蒸着法により10nmの厚みで蒸着させた(ステップS201)。続いて、同じく蒸着法により、電子輸送層26Dとして、例えば式(7-17)に示した有機材料を真空蒸着法により、15nmの厚みで蒸着させた(ステップS107)。更に、同じく蒸着法により、電子注入層26EとしてLiFを0.3nmの厚みで成膜し(ステップS108)、上部電極17としてAlを100nmの厚みで形成した(ステップS109)

。最後に、CVD法によりSiNよりなる保護層30を3μm形成し、エポキシ樹脂を用いて固体封止を行った。このようにして得られた赤色有機EL素子20R，緑色有機EL素子20G，青色有機EL素子20Bを組み合わせることによりフルカラー有機EL表示装置（実施例2-1）を得た。

【手続補正20】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0197

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0197】

表1は実施例1-1~1-10，2，および比較例1-1~1-3における各層の組成の一覧を示したものである。表2は上記実施例1-1~1-10，2および比較例1-1~1-3の測定結果の一覧である。

【手続補正21】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0203

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0203】

なお、以上のような効果は実施例1-1~1-10，2において用いた低分子材料に限らず、式(4-1)～式(12-29)に示したその他の低分子材料においても同様の効果が得られた。また、本実施例1-1~1-10，2では正孔注入層16AR，16AG，16AB，26AR，26AG，26AB、正孔輸送層16BR，16BG，16BB，26BR，26BG，26BBおよび発光層16CR，16CG，16CB，26CR，26CG，26CBをノズルコート方式を用いて形成したが、塗付方式は限定しない。インクジェット方式、スピンドルコート方式、スリットコート方式等の塗布方式に限らず、オフセット印刷方式、フレキソ印刷方式、グラビア印刷方式または凸版印刷方式等の各種印刷方式だけでなく、有機EL材料を噴霧し、高精細のマスク等で塗訳を行う噴霧方式を用いて形成した有機EL表示装置でも本実施例の結果と同様の結果が得られた。