

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6231009号
(P6231009)

(45) 発行日 平成29年11月15日 (2017.11.15)

(24) 登録日 平成29年10月27日 (2017.10.27)

(51) Int. Cl.	F I
H05B 33/28 (2006.01)	H05B 33/28
H01B 5/14 (2006.01)	H01B 5/14 A
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 A

請求項の数 7 (全 79 頁)

(21) 出願番号	特願2014-543281 (P2014-543281)	(73) 特許権者	000001270
(86) (22) 出願日	平成25年10月21日 (2013.10.21)		コニカミノルタ株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2013/078471		東京都千代田区丸の内二丁目7番2号
(87) 国際公開番号	W02014/065236	(74) 代理人	110001254
(87) 国際公開日	平成26年5月1日 (2014.5.1)		特許業務法人光陽国際特許事務所
審査請求日	平成28年2月18日 (2016.2.18)	(72) 発明者	飯島 貴之
審査番号	不服2016-18178 (P2016-18178/J1)		東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ
審査請求日	平成28年12月5日 (2016.12.5)		ニカミノルタ株式会社内
(31) 優先権主張番号	特願2012-232930 (P2012-232930)	(72) 発明者	尾関 秀謙
(32) 優先日	平成24年10月22日 (2012.10.22)		東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		ニカミノルタ株式会社内
		(72) 発明者	吉田 和央
			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】 透明電極、電子デバイスおよび有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

基材上に設けられ、かつ、中間層と、前記中間層上に隣接して設けられる導電性層とを含む透明電極であって、

前記基材側から、前記中間層と、前記導電性層とが順次積層され、

前記導電性層が、銀を主成分として構成され、

前記中間層には、双極子モーメントが5.0～25.0デバイの範囲内である有機化合物が含有されていることを特徴とする透明電極。

【請求項 2】

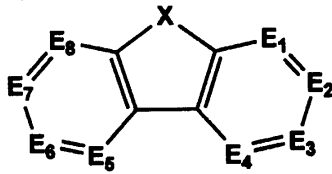
前記有機化合物が、芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子を有する芳香族複素環を有することを特徴とする請求項1に記載の透明電極。

【請求項 3】

前記有機化合物が、一般式 (I) で表されることを特徴とする請求項2に記載の透明電極。

【化 1】

一般式(I)



〔一般式（I）中、Xは、 NR_1 、酸素原子または硫黄原子を表す。E₁～E₈は、それぞれ独立に CR_2 または窒素原子を表し、少なくとも1つは窒素原子を表す。R₁およびR₂は、それぞれ独立に水素原子または置換基を表す。〕

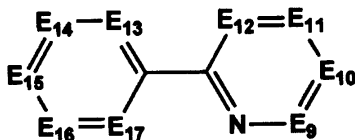
10

【請求項 4】

前記有機化合物が、一般式（II）で表されることを特徴とする請求項 2 に記載の透明電極。

【化 2】

一般式(II)



〔一般式（II）中、E₉～E₁₇は、それぞれ独立に CR_3 を表す。R₃は、水素原子または置換基を表す。〕

20

【請求項 5】

前記一般式（I）または前記一般式（II）で表される前記有機化合物の双極子モーメントが、 $9.0 \sim 20.0$ デバイの範囲内であることを特徴とする請求項 3 または 4 に記載の透明電極。

【請求項 6】

請求項 1 ～ 5 のいずれか一項に記載の透明電極を備えることを特徴とする電子デバイス。

【請求項 7】

請求項 1 ～ 5 のいずれか一項に記載の透明電極を備え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。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、透明電極、電子デバイスおよび有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に導電性と光透過性とを兼ね備え、かつ耐久性に優れた透明電極、この透明電極を用いた電子デバイスおよび有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【背景技術】

【0002】

有機材料のエレクトロルミネッセンス（electroluminescence：以下ELと記す。）を利用した有機EL素子（有機電界発光素子ともいう。）は、数V～数十V程度の低電圧で発光が可能な薄膜型の完全固体素子であり、高輝度、高発光効率、薄型、軽量といった多くの優れた特徴を有する。このため、各種ディスプレイのバックライト、看板や非常灯等の表示板、照明光源等の面発光体として近年注目されている。

40

【0003】

このような有機EL素子は、2枚の電極間に有機材料からなる発光層を配置した構成であり、発光層で生じた発光光は電極を透過して外部に取り出される。このため、2枚の電極のうちの少なくとも一方は透明電極として構成される。

【0004】

50

透明電極としては、酸化インジウムスズ ($\text{SnO}_2 - \text{In}_2\text{O}_3$: Indium Tin Oxide: ITO) 等の酸化物半導体系の材料が一般的に用いられているが、ITOと銀とを積層して低抵抗化を狙った検討もなされている (たとえば、特許文献1、2参照)。しかしながら、ITOはレアメタルのインジウムを使用しているため、材料コストが高く、また抵抗を下げるために成膜後に300℃程度でアニール処理する必要がある。

【0005】

そこで、電気伝導率の高い銀 (Ag) とマグネシウム (Mg) との合金を用いて薄膜を構成することで透過率と導電性との両立を図った技術 (特許文献3参照。) や、安価で入手容易な亜鉛 (Zn) やスズ (Sn) を原料として薄膜を構成する技術 (特許文献4参照。)、銀とアルミニウムとの合金を用いて薄膜を構成することで短波長領域の光を透過させる技術 (特許文献5参照。) 等が提案されている。

しかしながら、特許文献3に開示されている電極の抵抗値はせいぜい100Ω/□前後で、電極の導電性としては不十分であり、加えて、マグネシウムが酸化され易いため、経時劣化が著しいという問題があった。

特許文献4に開示されている電極では、十分な抵抗値が得られない、Znを含有したZnO系の薄膜は水と反応して性能が変動し易い、Snを含有した SnO_2 系の薄膜はエッチングが困難である、等の問題があった。

特許文献5に開示されている電極の抵抗値は、せいぜい128Ω/□であり、十分な導電性と光透過性とを兼ね備えた透明電極とは言えない。

【0006】

一方、陰極として銀を膜厚15nmで蒸着した有機EL素子について開示されている (特許文献6参照)。

しかしながら、特許文献6に開示されている銀膜においては、薄膜化すると、銀がマイグレーションし易いため電極特性を維持することが困難であり、新たな技術の開発が望まれている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】特開2002-015623号公報

【特許文献2】特開2006-164961号公報

【特許文献3】特開2006-344497号公報

【特許文献4】特開2007-031786号公報

【特許文献5】特開2009-151963号公報

【特許文献6】米国特許出願公開第2011/0260148号明細書

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明は上記問題・状況に鑑みてなされたものであり、その解決課題は十分な導電性と光透過性とを兼ね備え、かつ耐久性に優れた透明電極、当該透明電極を備えた電子デバイスおよ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。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明者は、上記課題を解決すべく、上記問題の原因等について検討した結果、基材上に設けられ、かつ、中間層と、中間層上に隣接して設けられる導電性層とを含む透明電極であって、基材側から、中間層と、導電性層とが順次積層され、導電性層が、銀を主成分として構成され、中間層には、双極子モーメントが5.0~25.0デバイの範囲内である有機化合物が含有されることで、優れた導電性と光透過性とを両立し、かつ耐久性に優れた透明電極を実現できることを見出し、本発明に至った次第である。

【0010】

すなわち、本発明にかかる上記課題は、以下の手段により解決される。

【0011】

1. 基材上に設けられ、かつ、中間層と、前記中間層上に隣接して設けられる導電性層とを含む透明電極であって、

前記基材側から、前記中間層と、前記導電性層とが順次積層され、

前記導電性層が、銀を主成分として構成され、

前記中間層には、双極子モーメントが5.0～25.0デバイの範囲内である有機化合物が含有されていることを特徴とする透明電極。

【0012】

2. 前記有機化合物が、芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子を有する芳香族複素環を有することを特徴とする第1項に記載の透明電極。

10

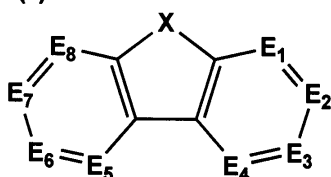
【0013】

3. 前記有機化合物が、一般式(I)で表されることを特徴とする第2項に記載の透明電極。

【0014】

【化1】

一般式(I)



20

【0015】

一般式(I)中、Xは、NR₁、酸素原子または硫黄原子を表す。E₁～E₈は、それぞれ独立にCR₂または窒素原子を表し、少なくとも1つは窒素原子を表す。R₁およびR₂は、それぞれ独立に水素原子または置換基を表す。

【0016】

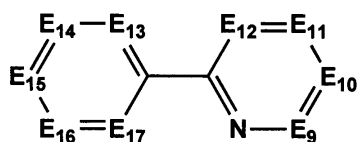
4. 前記有機化合物が、一般式(II)で表されることを特徴とする第2項に記載の透明電極。

30

【0017】

【化2】

一般式(II)



【0018】

一般式(II)中、E₉～E₁₇は、それぞれ独立にCR₃を表す。R₃は、水素原子または置換基を表す。

40

【0019】

5. 前記一般式(I)または前記一般式(II)で表される前記有機化合物の双極子モーメントが、9.0～20.0デバイの範囲内であることを特徴とする第3項または第4項に記載の透明電極。

【0020】

6. 第1項～第5項のいずれか一項に記載の透明電極を備えることを特徴とする電子デバイス。

【0021】

50

7. 第1項～第5項のいずれか一項に記載の透明電極を備え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。

【発明の効果】

【0022】

本発明によれば、十分な導電性と光透過性とを兼ね備え、かつ耐久性に優れた透明電極、当該透明電極を備えた電子デバイスおよ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。

【0023】

本発明の効果の発現機構、作用機構については明確にはなっていないが、以下のように推察される。

10

【0024】

すなわち、本発明の透明電極は、中間層の上部に、銀を主成分として構成されている導電性層が設けられており、かつ中間層には銀原子と親和性のある原子を有する化合物（銀親和性化合物）であって、かつ双極子モーメントが5.0～25.0デバイの範囲内である有機化合物が含有されている、という構成である。

これにより、中間層の上部に導電性層を成膜する際、導電性層を構成する銀原子が中間層に含有されている双極子モーメント5.0～25.0デバイの範囲内である有機化合物と相互作用し、中間層表面上での銀原子の拡散距離が減少し、特異箇所での銀の凝集を抑制することができたものである。

すなわち、銀原子は、まず銀原子と親和性のある原子を有する銀親和性化合物を含有する中間層表面上で2次元的な核を形成し、それを中心に2次元の単結晶層を形成するという層状成長型（Frank-van der Merwe：FM型）の膜成長によって成膜されるようになる。

20

【0025】

なお、一般的には、中間層表面において付着した銀原子が表面を拡散しながら結合して3次元的な核を形成し、3次元的な島状に成長するという島状成長型（Volumer-Weber：VW型）での膜成長により、島状に成膜し易いと考えられる。

しかし、本発明においては、中間層に含有されている銀親和性化合物である双極子モーメントが5.0～25.0デバイの範囲内である有機化合物により、島状成長が抑制され、層状成長が促進されると推察される。

30

したがって、薄い層厚でありながらも均一な層厚の導電性層が得られるようになる。その結果、より薄い膜厚として光透過性を保ちつつも、導電性が確保された透明電極とすることができる。

【図面の簡単な説明】

【0026】

【図1】本発明の透明電極の構成の一例を示す概略断面図である。

【図2】ニトロ基の共鳴式を示す図である。

【図3】窒素原子の結合様式を示す図である。

【図4】ピリジン環の分子軌道を示す模式図である。

【図5】ピロール環の分子軌道を示す模式図である。

40

【図6】イミダゾール環の分子軌道を示す模式図である。

【図7】 δ -カルボリン環の分子軌道を示す模式図である。

【図8】本発明の透明電極を用いた有機EL素子の第1例を示す概略断面図である。

【図9】本発明の透明電極を用いた有機EL素子の第2例を示す概略断面図である。

【図10】本発明の透明電極を用いた有機EL素子の第3例を示す概略断面図である。

【図11】本発明の透明電極を備えた有機EL素子を用いて発光面を大面積化した照明装置の概略断面図である。

【図12】実施例にて作製した有機EL素子を具備した発光パネルの概略断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0027】

50

本発明の透明電極は、導電性層と、導電性層に隣接して設けられる中間層と、を備え、導電性層が、銀を主成分として構成され、中間層には、双極子モーメントが5.0～25.0 デバイ(D)の範囲内である有機化合物が含有されていることを特徴とする。この特徴は、請求項1～7までの請求項にかかる発明に共通する技術的特徴である。

【0028】

本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、中間層に含有される有機化合物が芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子を有する芳香族複素環を有することが好ましい。

【0029】

また、中間層に含有される有機化合物が、一般式(I)または一般式(II)で表される有機化合物であることが特に好ましく、さらには、一般式(I)または一般式(II)で表される有機化合物の双極子モーメントが、9.0～20.0 デバイの範囲内であることがより好ましい。

【0030】

また、本発明の電子デバイスは、本発明の透明電極を備えることを特徴とする。

また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、本発明の透明電極を備えることを特徴とする。

【0031】

なお、本発明における双極子モーメントとは、化合物の電荷の偏りを表すものであり、米国Gaussian社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるGaussian03 (Gaussian03, Revision D02, M. J. Frisch, et al, Gaussian, Inc., Wallingford CT, 2004.)を用い、本発明にかかる化合物をキーワードとしてB3LYP/6-31G*を用いて、対象とする分子構造の構造最適化を行うことにより算出した(デバイ単位換算値)。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ことが知られている。

【0032】

以下、本発明とその構成要素およ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、本発明において示す「～」は、その前後に記載される数値を下限値および上限値として含む意味で使用する。

【0033】

＜1. 透明電極＞

＜透明電極の構成＞

図1は、本発明の透明電極の構成の一例を示す概略断面図である。

図1に示すように、透明電極1は、中間層1aと、この中間層1aの上部に導電性層1bとが積層された2層構造であり、たとえば、基材11の上部に、中間層1a、導電性層1bの順に設けられている。このうち中間層1aは、双極子モーメントが5.0～25.0 デバイの範囲内である有機化合物が含有されて構成されている層であり、導電性層1bは銀を主成分として構成されている層である。

なお、本発明において導電性層1bの主成分とは、導電性層1bを構成する成分のうち、構成比率が最も高い成分をいう。本発明にかかる導電性層1bは、銀を主成分としており、その構成比率としては、60質量%以上であることが好ましく、90質量%以上であることがより好ましく、98質量%以上であることが特に好ましい。

また、本発明の透明電極1の透明とは、波長550nmでの光透過率が50%以上であることをいう。

【0034】

次に、このような積層構造の透明電極1が設けられる基材11、透明電極1を構成する中間層1aおよび導電性層1bの順に、詳細な構成を説明する。

【0035】

[基材]

本発明の透明電極 1 が形成される基材 1 1 としては、たとえば、ガラス、プラスチック等を挙げることができるが、これらに限定されない。また、基材 1 1 は透明であっても不透明であってもよい。本発明の透明電極 1 が、基材 1 1 側から光を取り出す電子デバイスに用いられる場合には、基材 1 1 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基材 1 1 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。

【0036】

ガラスとしては、たとえば、シリカガラス、ソーダ石灰シリカガラス、鉛ガラス、ホウケイ酸塩ガラス、無アルカリガラス等が挙げられる。これらのガラス材料の表面には、中間層 1 a との密着性、耐久性、平滑性の観点から、必要に応じて、研磨等の物理的处理が施されていてもよいし、無機物または有機物からなる被膜や、これらの被膜を組み合わせたハイブリッド被膜が形成されていてもよい。

10

【0037】

樹脂フィルムとしては、たとえば、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またはそれらの誘導体、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、アクリルあるいはポリアリレート類、アートン (商品名 JSR 社製) あるいはアペル (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が挙げられる。

20

【0038】

上記したように、樹脂フィルムの表面には、無機物または有機物からなる被膜や、これらの被膜を組み合わせたハイブリッド被膜が形成されていてもよい。このような被膜およびハイブリッド被膜は、JIS K 7129-1992 に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度 ($25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $90 \pm 2\% \text{RH}$) が $0.01 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のバリア性フィルム (バリア膜等ともいう。) であることが好ましい。さらには、JIS K 7126-1987 に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ ml}/(\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が $1 \times 10^{-5} \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

30

【0039】

以上のようなバリア性フィルムを形成する材料としては、水分や酸素等の電子デバイスや有機 EL 素子の劣化をもたらす要因の浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、たとえば、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。さらに、当該バリア性フィルム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 (有機層) の積層構造を持たせることがより好ましい。無機層と有機層と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。

40

【0040】

バリア性フィルムの作製方法については特に限定はなく、たとえば、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、コーティング法等を用いることができるが、特開 2004-68143 号公報に記載の大気圧プラズマ重合法によるものが特に好ましい。

【0041】

一方、基材 1 1 を不透明な材料で構成する場合には、たとえば、アルミニウム、ステンレス等の金属基板、フィルムや不透明樹脂基板、セラミック製の基板等を用いることができる。

50

【0042】

[中間層]

本発明にかかる中間層1aは、双極子モーメントが5.0～25.0デバイの範囲内である有機化合物を用いて構成された層である。このような中間層1aが基材11上に成膜されたものである場合、その成膜方法としては、塗布法、インクジェット法、コーティング法、ディップ法等のウェットプロセスを用いる方法や、蒸着法（抵抗加熱、EB法等）、スパッタ法、CVD法等のドライプロセスを用いる方法等が挙げられる。中でも蒸着法が好ましく適用される。

【0043】

本発明において、中間層1aに含有される有機化合物の双極子モーメントは、5.0～25.0デバイ（ $16.7 \times 10^{-30} \sim 83.4 \times 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$ ）の範囲内である。

10

【0044】

中間層1aに含有される有機化合物の双極子モーメントが5.0デバイより小さい場合には、分子内での電荷の偏りが小さく、表面エネルギーが小さくなってしまうため、中間層1a表面のぬれ性が小さく、また、銀（または銀イオン）との親和性が弱くなってしまうため、導電性層1bと中間層1aとの密着性が低下してしまう。

双極子モーメントが25.0デバイより大きい場合には、電荷の偏りが大きくなりすぎてしまい、もしくは電荷分離状態となってしまう、特に、本発明の透明電極1をカソードとして用いた場合、電子が分子内でトラップされ、電子輸送層への電子移動度を低下させ、結果として、素子性能の低下を招いてしまう。

20

【0045】

すなわち、本発明の透明電極1は、中間層1aの材料として双極子モーメントの大きい（電荷の偏りが大きい）有機化合物を用いることで、その分子の表面エネルギーを大きくし、これを銀の薄膜形成によってより安定な状態とするものである。より詳しくは、中間層1aに含有される有機化合物の極性の強い部位（ δ^- ）は、銀（または銀イオン（ Ag^+ ））との親和性が強いため、両者の接着面積を広くし、より効果的な成膜を可能とするものである。

本発明において、中間層1aに含有される有機化合物の双極子モーメントを高くする手段としては、もともと高双極子モーメントを有するユニットを母核とする有機化合物を用いてもよいし、極性の高い官能基を導入することで達成することもできる。

30

【0046】

また、中間層1aに含有される有機化合物が、芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子を有する芳香族複素環を有することが好ましい。

【0047】

なお、本発明において、「芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子」とは、非共有電子対を持つ窒素原子であって、当該非共有電子対が不飽和環状化合物の芳香族性に必須要素として直接的に関与していない窒素原子のことをいう。すなわち、共役不飽和環構造（芳香環）上の非局在化した π 電子系に、非共有電子対が、化学構造式上、芳香性発現のために必須のものとして関与していない窒素原子をいう。

40

以下、詳細に説明する。

【0048】

窒素原子は、第15族元素であり、最外殻に5個の電子を有する。このうち3個の不対電子は他の原子との共有結合に用いられ、残りの2個は一对の非共有電子対となるため、通常窒素原子の結合本数は3本である。

たとえば、アミノ基（ $-\text{NR}^1\text{R}^2$ ）、アミド基（ $-\text{C}(=\text{O})\text{NR}^1\text{R}^2$ ）、ニトロ基（ $-\text{NO}_2$ ）、シアノ基（ $-\text{CN}$ ）、ジアゾ基（ $-\text{N}_2$ ）、アジド基（ $-\text{N}_3$ ）、ウレア結合（ $-\text{NR}^1\text{C}=\text{ONR}^2-$ ）、イソチオシアネート基（ $-\text{N}=\text{C}=\text{S}$ ）、チオアミド基（ $-\text{C}(=\text{S})\text{NR}^1\text{R}^2$ ）などが挙げられ、これらは本発明の「芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子」に該当する。

50

このうち、たとえば、ニトロ基 ($-\text{NO}_2$) の共鳴式は、図 2 のように記すことができる。ニトロ基における窒素原子の非共有電子対は、厳密には、酸素原子との共鳴構造に利用されているが、本発明においては、ニトロ基の窒素原子も非共有電子対を持つこととする。

【0049】

一方、窒素原子は、非共有電子対を利用することで 4 本目の結合を作り出すこともできる。たとえば、図 3 で示されるように、テトラブチルアンモニウムクロライド (TBAC) は、四つ目のブチル基が窒素原子とイオン結合しており、対イオンとして塩化物イオンを有する第四級アンモニウム塩である。また、トリス (2-フェニルピリジン) イリジウム (III) ($\text{Ir}(\text{ppy})_3$) は、イリジウム原子と窒素原子とが配位結合している中性的金属錯体である。これらの化合物は、窒素原子を有するものの、その非共有電子対がそれぞれイオン結合、配位結合に利用されてしまっているため、本発明の「芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子」には該当しない。

すなわち、本発明は、結合に利用されていない窒素原子の非共有電子対を有効利用するというものである。

【0050】

また、窒素原子は、芳香環を構成することのできるヘテロ原子として一般的であり、芳香族性の発現に寄与することができる。この「含窒素芳香環」としては、たとえば、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、トリアジン環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環等が挙げられる。

【0051】

ピリジン環の場合、図 4 に示すとおり、6 員環状に並んだ共役 (共鳴) 不飽和環構造において、非局在化した π 電子の数が 6 個であるため、 $4n+2$ ($n=0$ または自然数) のヒュッケル則を満たす。6 員環内の窒素原子は、 $-\text{CH}=\text{}$ を置換したものであるため、1 個の不對電子を 6 π 電子系に動員するのみで、非共有電子対は芳香族性発現のために必須のものとして関与していない。

したがって、ピリジン環の窒素原子は、本発明の「芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子」に該当する。

【0052】

ピロール環の場合、図 5 に示すとおり、5 員環内を構成する炭素原子の一つが窒素原子に置換された構造であるが、やはり π 電子の数は 6 個であり、ヒュッケル則を満たした含窒素芳香環である。ピロール環の窒素原子は、水素原子とも結合しているため、非共有電子対が 6 π 電子系に動員されている。

したがって、ピロール環の窒素原子は、非共有電子対を有するものの、芳香族性発現のために必須のものとして利用されてしまっているため、本発明の「芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子」には該当しない。

【0053】

イミダゾール環は、図 6 に示すとおり、5 員環内に二つの窒素原子が 1、3 位に置換した構造を有しており、やはり π 電子数が 6 個の含窒素芳香環である。窒素原子 N^1 は、1 個の不對電子のみを 6 π 電子系に動員し、非共有電子対を芳香族性発現のために利用していないピリジン環型の窒素原子である。一方、窒素原子 N^2 は、非共有電子対を 6 π 電子系に動員しているピロール環型の窒素原子である。

したがって、イミダゾール環の窒素原子 N^1 は、本発明の「芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子」に該当する。

【0054】

含窒素芳香環骨格を有する縮環化合物の場合も同様である。たとえば、 δ -カルボリンは、図 7 に示すとおり、ベンゼン環骨格、ピロール環骨格およびピリジン環骨格がこの順に縮合したアザカルバゾール化合物である。ピリジン環の窒素原子 N^3 は 1 個の不對電子のみを、ピロール環の窒素原子 N^4 は非共有電子対を、それぞれ π 電子系に動員しており、環を形成している炭素原子からの 11 個の π 電子とともに、全体の π 電子数が 14 個の

芳香環となっている。

したがって、 δ -カルボリンの二つの窒素原子のうち、ピリジン環の窒素原子 N^3 は本発明の「芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子」に該当するが、ピロール環の窒素原子 N^4 はこれに該当しない。

このように、ピリジン環やピロール環は、その骨格が縮環化合物中に組み込まれている場合でも、その効果が阻害されたり抑制されたりすることはなく、単環として利用したときとなんら相違はない。

【0055】

以上のように、本発明の「芳香族性に関与しない非共有電子対を持つ窒素原子」は、その非共有電子対を導電性層1bの主成分である銀と強い相互作用を発現するために重要である。そのような窒素原子としては、安定性、耐久性の観点から、含窒素芳香環中の窒素原子であることが好ましい。

10

【0056】

また、中間層1aに含有される有機化合物が、一般式(I)または一般式(II)で表される有機化合物であることが好ましく、さらには、一般式(I)または一般式(II)で表される有機化合物の双極子モーメントが、 $9.0 \sim 20.0$ デバイ ($30.0 \times 10^{-30} \sim 66.7 \times 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$) の範囲内であることがより好ましい。

【0057】

[一般式(I)で表される化合物]

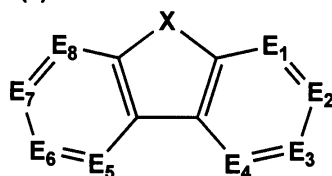
本発明の透明電極1において、中間層1aに含有される化合物としては、下記一般式(I)で表される化合物であることが好ましい。

20

【0058】

【化3】

一般式(I)



30

【0059】

一般式(I)中、Xは、 NR_1 、酸素原子または硫黄原子を表す。 $E_1 \sim E_8$ は、それぞれ独立に CR_2 または窒素原子を表し、少なくとも1つは窒素原子を表す。 R_1 および R_2 は、それぞれ独立に水素原子または置換基を表す。

【0060】

一般式(I)において、 R_1 で表される置換基としては、アルキル基(たとえば、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(たとえば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(たとえば、ビニル基、アリル基等)、アルキニル基(たとえば、エチニル基、プロパルギル基等)、芳香族炭化水素基(芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、たとえば、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、ビフェニル基等)、芳香族複素環基(たとえば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基(カルボリニル基のカルボリン環を構成する任意の炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す。)、フタラジニル基等)、複素環基(たとえば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホルル基、オキサゾリジル基等)、アルコキシ基(たとえば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチ

40

50

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(たとえば、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(たとえば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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またはヘテロアリールスルホニル基(たとえば、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(たとえば、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、ピペリジル基(ピペリジニル基ともいう。))、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジニル基等)、ハロゲン原子(たとえば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(たとえば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(たとえば、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)、リン酸エステル基(たとえば、ジヘキシルホスホリル基等)、亜リン酸エステル基(たとえばジフェニルホスフィニル基等)、ホスホノ基等が挙げられる。

【0061】

10

20

30

40

50

一般式（I）において、 R_2 で表される置換基としては、 R_1 で表される置換基と同様のものを挙げるができる。

【0062】

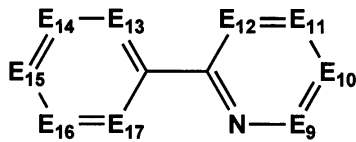
[一般式（II）で表される化合物]

本発明の透明電極1において、中間層1aに含有される化合物としては、下記一般式（II）で表される化合物であることが好ましい。

【0063】

【化4】

一般式(II)



10

【0064】

一般式（II）中、 $E_9 \sim E_{17}$ はそれぞれ独立に CR_3 を表し、 R_3 は水素原子または置換基を表す。

【0065】

一般式（II）において、 R_3 で表される置換基としては、上記一般式（I）における R_1 で表される置換基と同様のものを挙げるができる。

20

【0066】

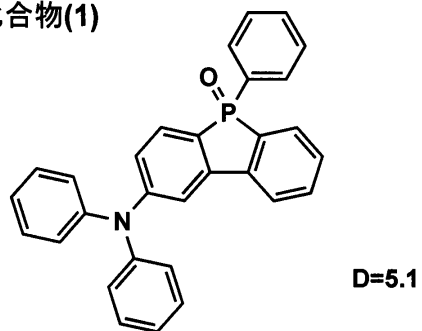
[中間層に含有される化合物の具体例]

以下に、本発明にかかる中間層1aに含有される有機化合物の具体例（例示化合物（1）～（49））とその双極子モーメント（デバイ）を示すが、これらに限定されるものではない。

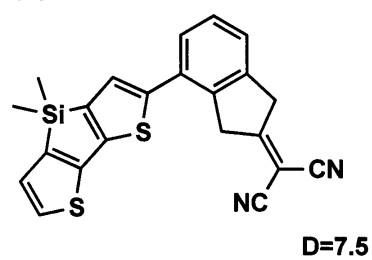
【0067】

【化 5】

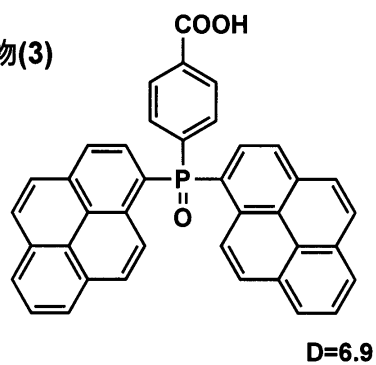
化合物(1)



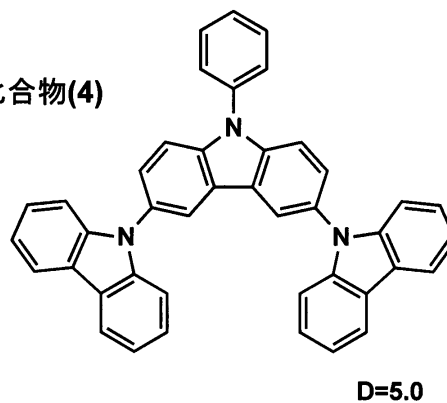
化合物(2)



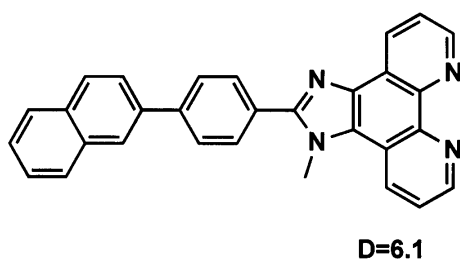
化合物(3)



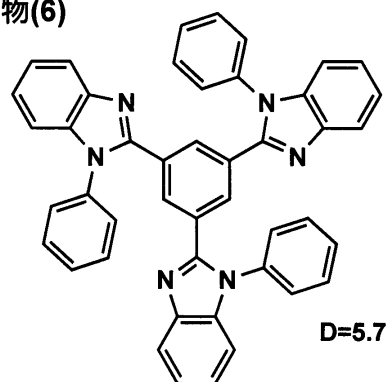
化合物(4)



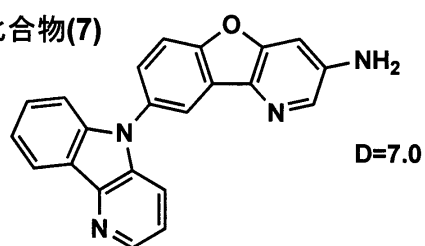
化合物(5)



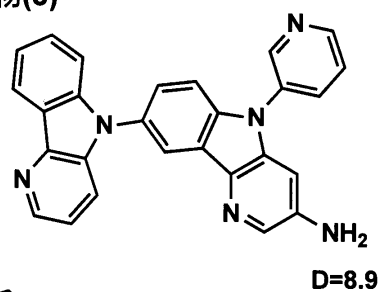
化合物(6)



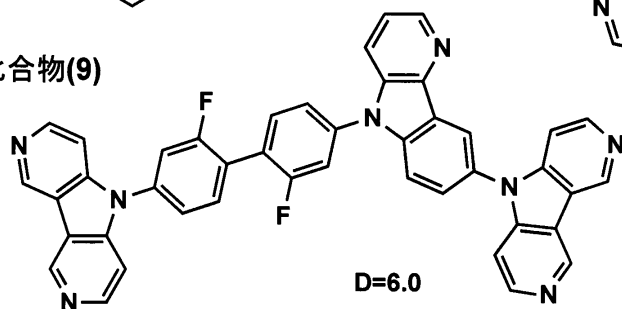
化合物(7)



化合物(8)



化合物(9)



【 0 0 6 8 】

10

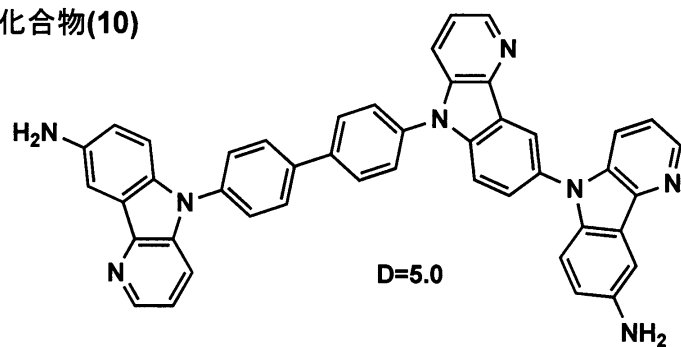
20

30

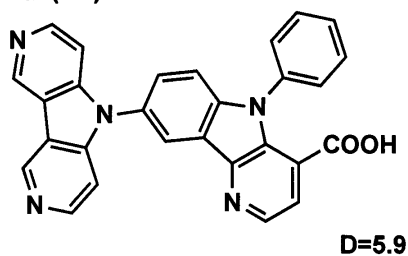
40

【化 6】

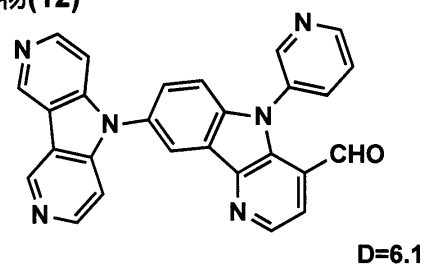
化合物(10)



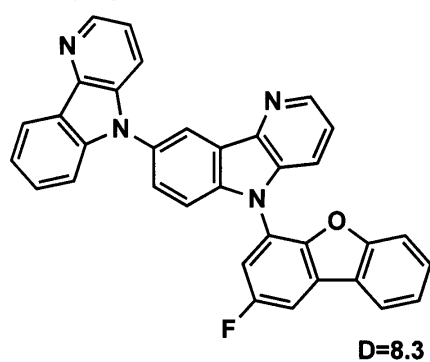
化合物(11)



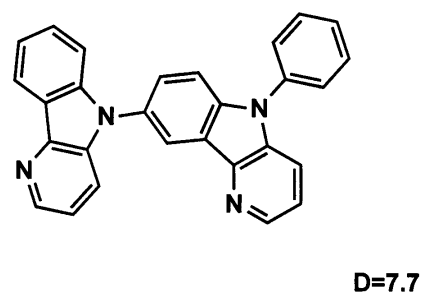
化合物(12)



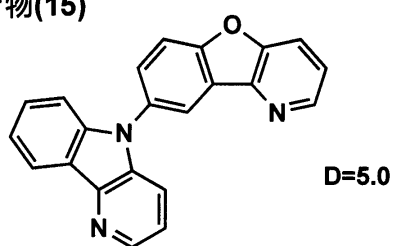
化合物(13)



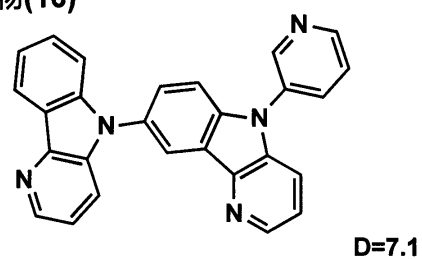
化合物(14)



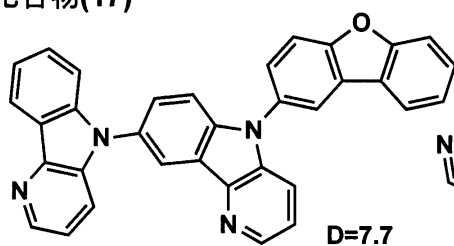
化合物(15)



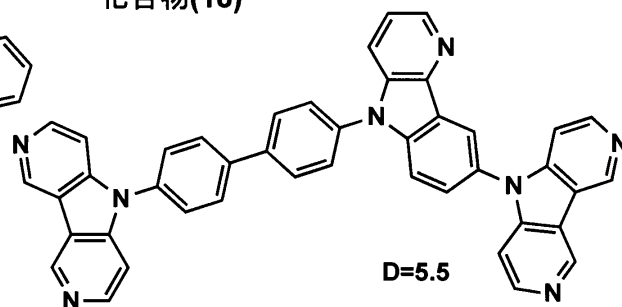
化合物(16)



化合物(17)



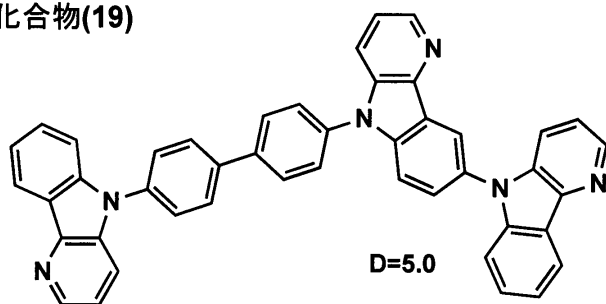
化合物(18)



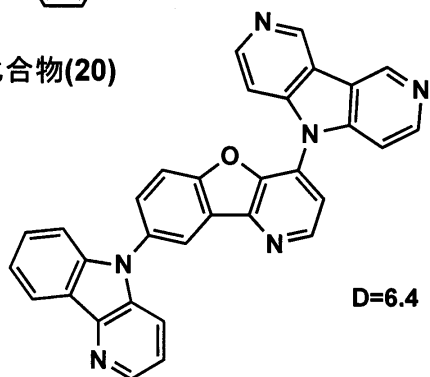
【 0 0 6 9 】

【化 7】

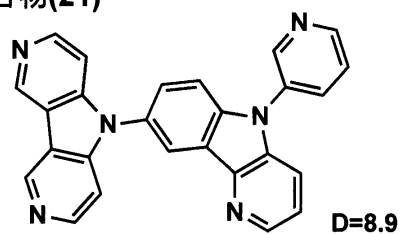
化合物(19)



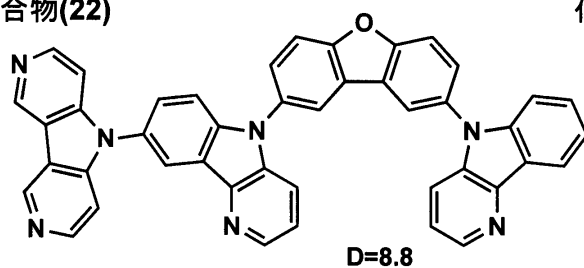
化合物(20)



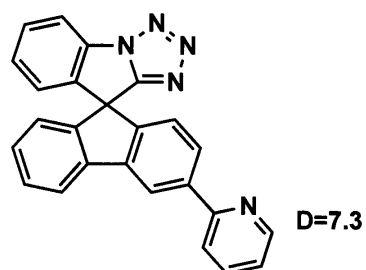
化合物(21)



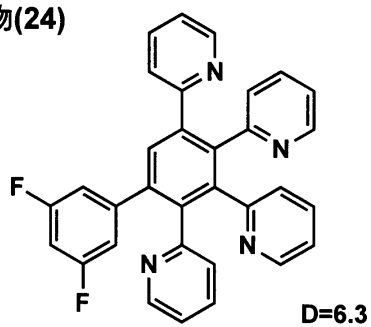
化合物(22)



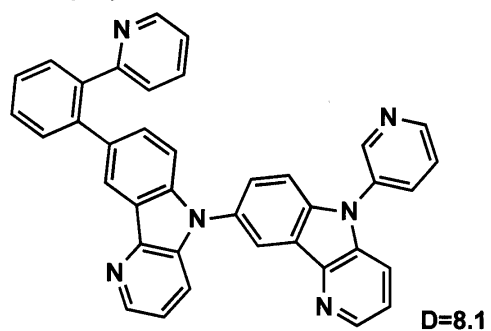
化合物(23)



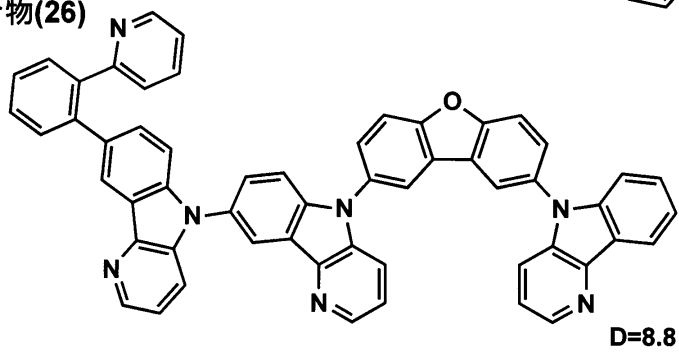
化合物(24)



化合物(25)



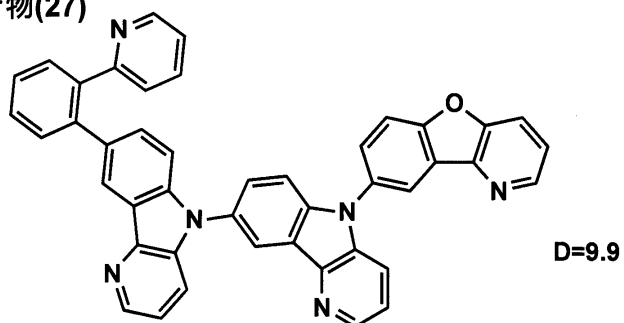
化合物(26)



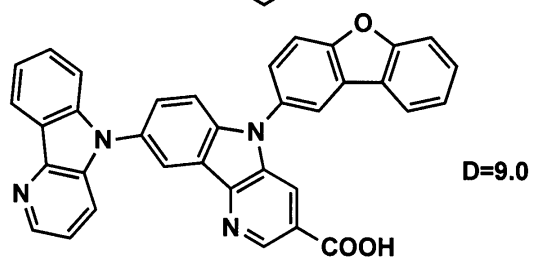
【 0 0 7 0 】

【化 8】

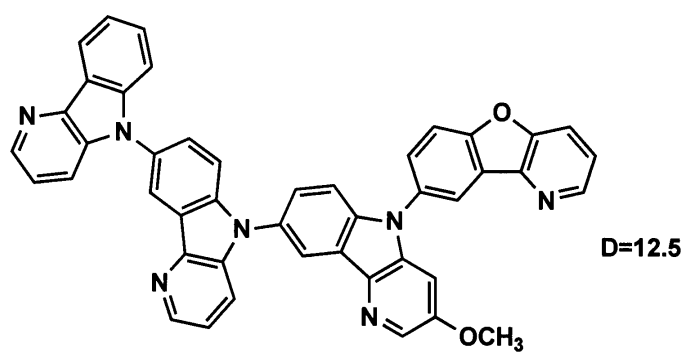
化合物(27)



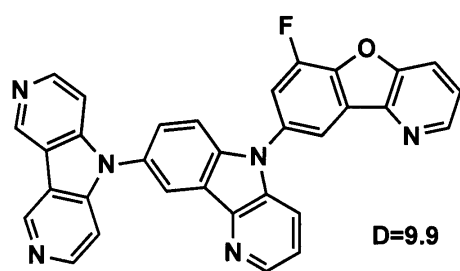
化合物(28)



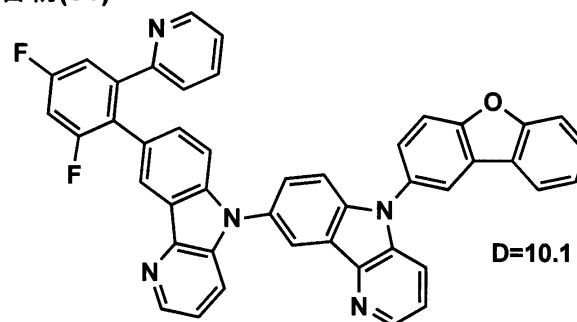
化合物(29)



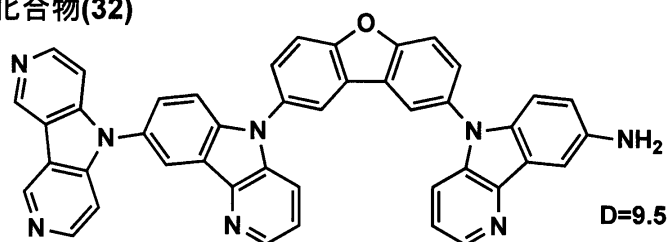
化合物(30)



化合物(31)



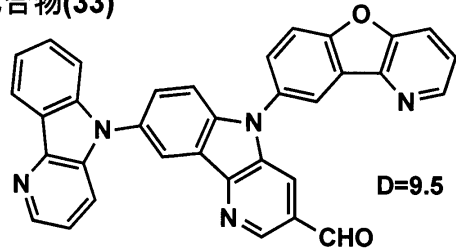
化合物(32)



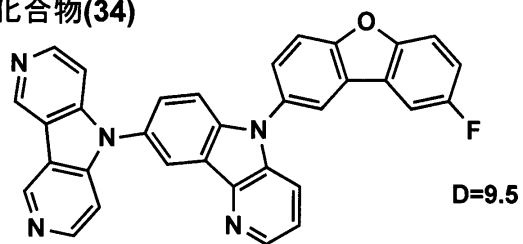
【0071】

【化 9】

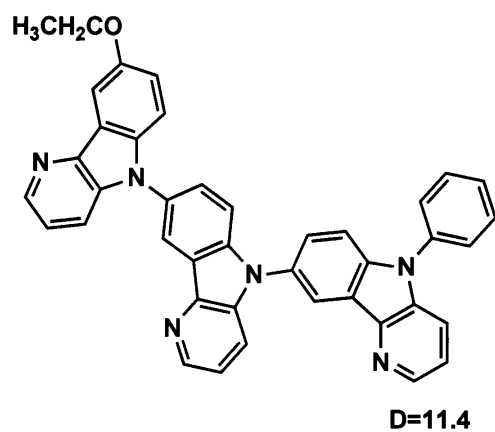
化合物(33)



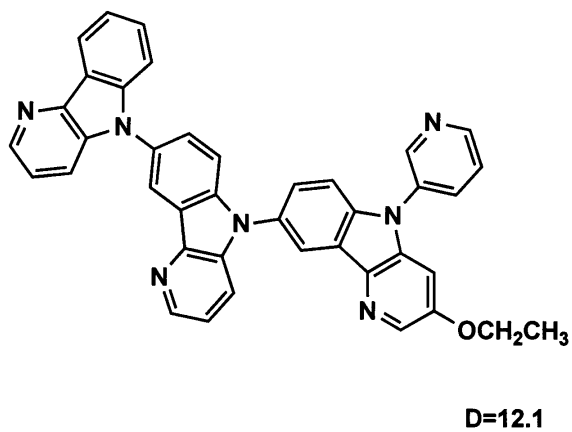
化合物(34)



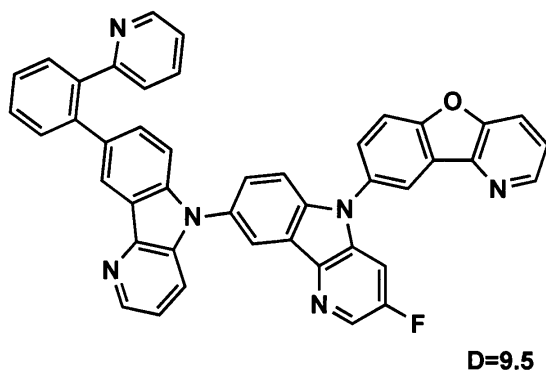
化合物(35)



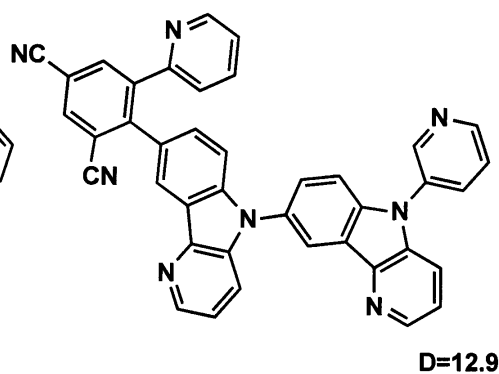
化合物(36)



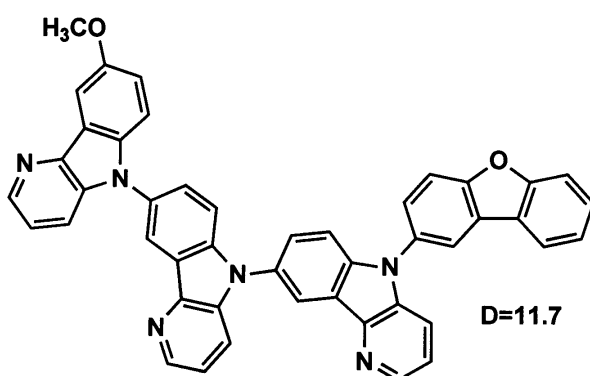
化合物(37)



化合物(38)



化合物(39)



【0072】

10

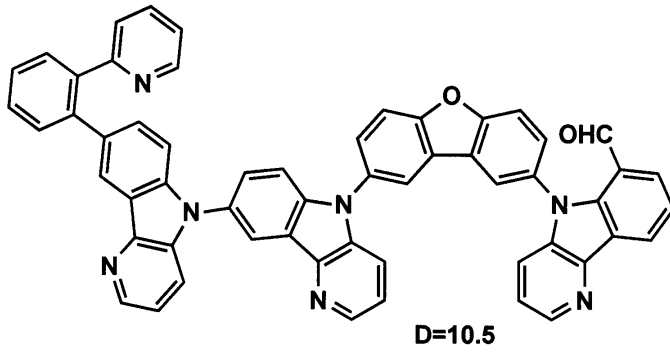
20

30

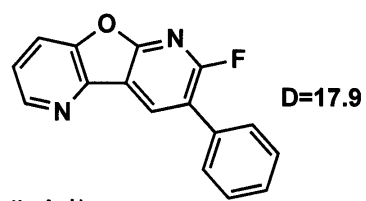
40

【化 10】

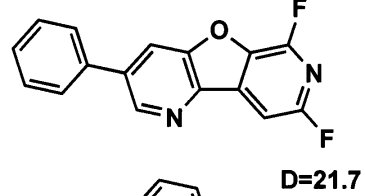
化合物(40)



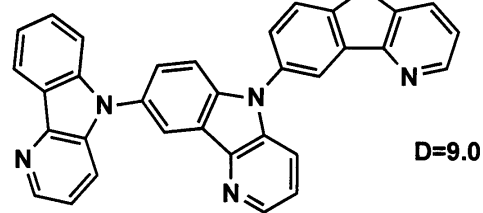
化合物(41)



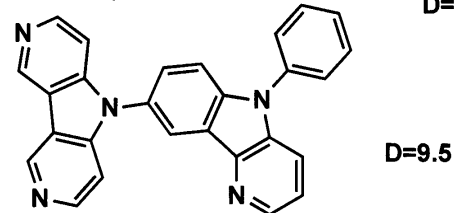
化合物(42)



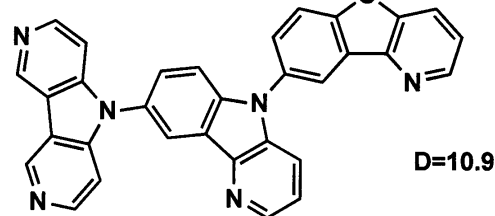
化合物(43)



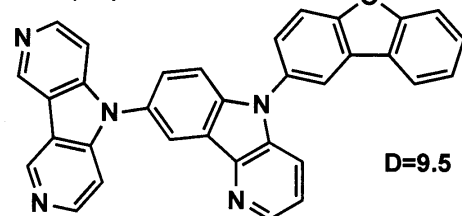
化合物(44)



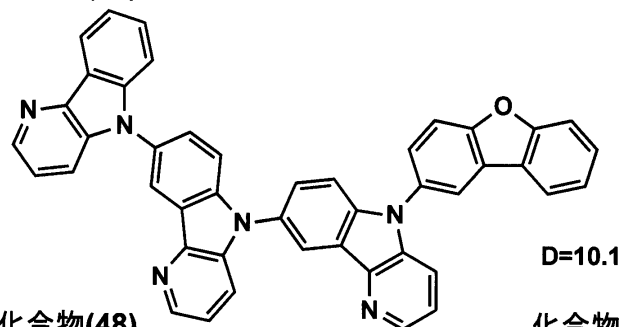
化合物(45)



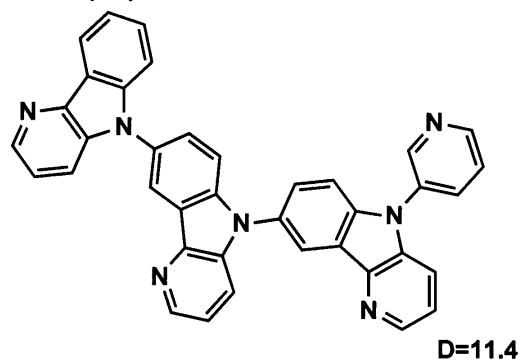
化合物(46)



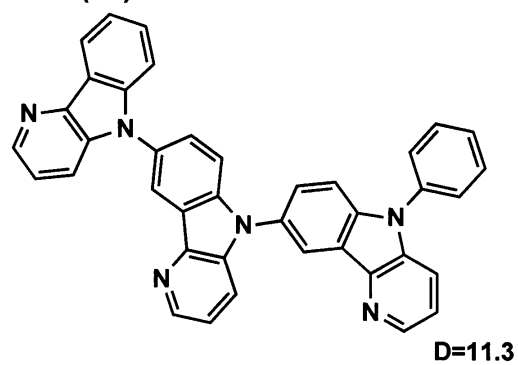
化合物(47)



化合物(48)



化合物(49)



【0073】

本発明にかかる有機化合物は、従来公知の合成方法に準じて、容易に合成することができる。

以下、本発明の中間層1aに含有される有機化合物の合成方法の一例を示すが、本発明

10

20

30

40

50

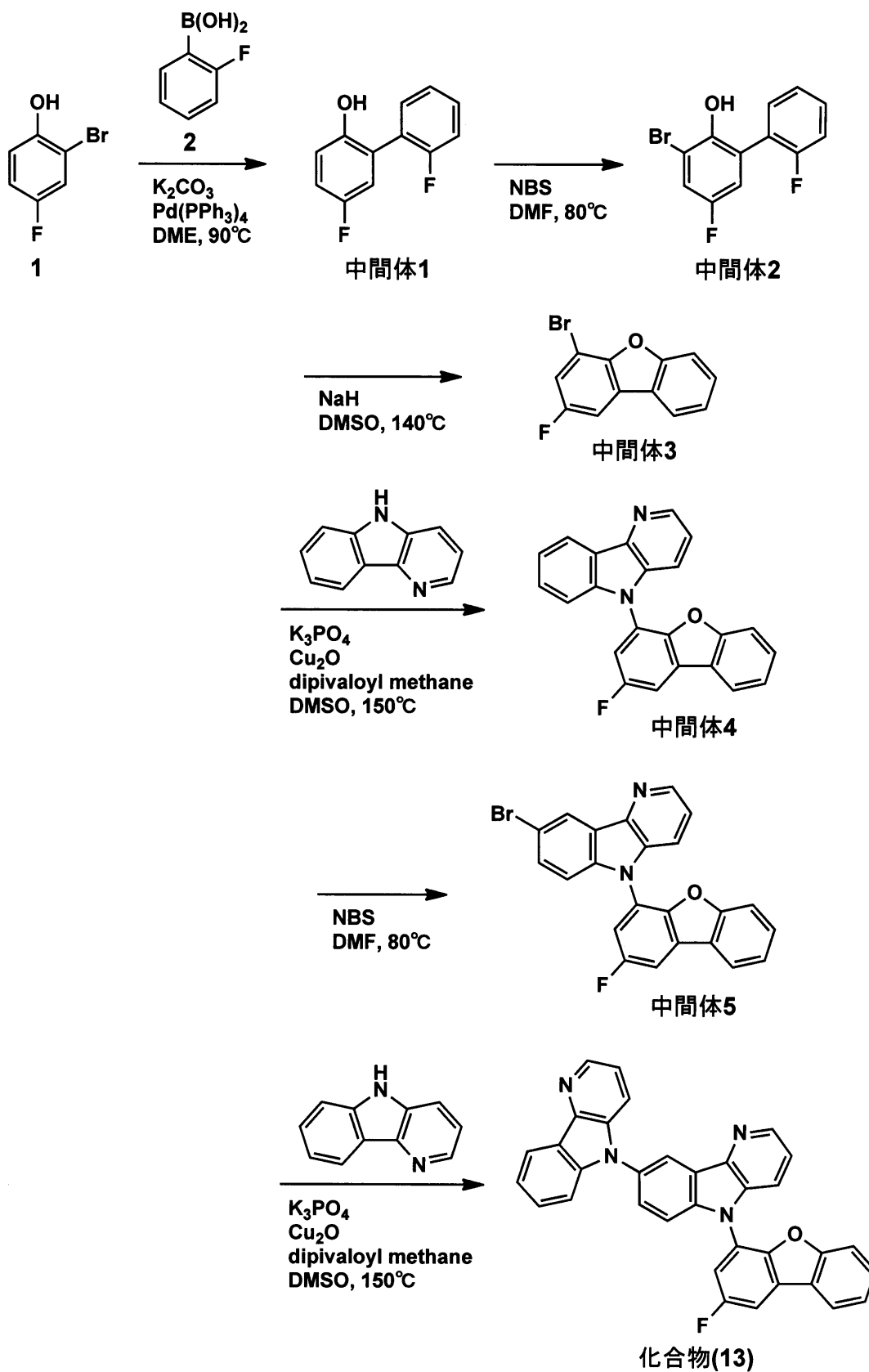
はこれに限定されるものではない。

【0074】

[合成例：例示化合物（13）の合成]

【0075】

【化11】



10

20

30

40

50

【0076】

(1) 中間体1の合成

200mlナスフラスコに、化合物1 (20g、0.11mol)、化合物2 (1.2eq.)、 K_2CO_3 (3.5eq.) および $Pd(PPh_3)_4$ (0.02eq.) を含むDME (ジメチルエーテル) (100ml) 溶液を加えて、窒素雰囲気下、90℃で12時間加熱撹拌した。

その後、室温 (25℃) まで戻し、溶液を分液ロートに移して抽出を行った。酢酸エチルと飽和食塩水を加えて有機相と水相に分離した後、有機相を取り出し、減圧留去した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体1の白色固体 (16.2g、収率75%) を得た。

10

【0077】

(2) 中間体2の合成

200mlナスフラスコに、中間体1 (16g、0.078mol) およびNBS (N-ブロモスクシンイミド) (1.0eq.) を含むDMF (N,N-ジメチルホルムアミド) (120ml) 溶液を加えて、窒素雰囲気下、60℃で12時間加熱撹拌した。

その後、室温 (25℃) まで戻し、溶液を分液ロートに移して抽出を行った。酢酸エチルと飽和食塩水を加えて有機相と水相に分離した後、有機相を取り出し、減圧留去した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体2の白色固体 (8.5g、収率37%) を得た。

20

【0078】

(3) 中間体3の合成

200mlナスフラスコに、中間体2 (8.0g、0.078mol) およびNaH (2.0eq.) を含むDMSO (ジメチルスルホキシド) (40ml) 溶液を加えて、窒素雰囲気下、140℃で5時間加熱撹拌した。

その後、室温 (25℃) まで戻し、溶液を分液ロートに移して抽出を行った。酢酸エチルと飽和食塩水を加えて有機相と水相に分離した後、有機相を取り出し、減圧留去した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体3の白色固体 (5.5g、収率27%) を得た。

【0079】

(4) 中間体4の合成

100mlナスフラスコに、中間体3 (5.5g、0.021mol)、 δ -カルボリン (1.1eq.)、 K_3PO_4 (3eq.)、 Cu_2O (0.2eq.) およびジピバロイルメタン (0.5eq.) を含むDMSO (30ml) 溶液を加えて、窒素雰囲気下、150℃で12時間還流した。

その後、室温 (25℃) まで戻し、溶液を分液ロートに移して抽出を行った。酢酸エチルと飽和食塩水を加えて有機相と水相に分離した後、有機相を取り出し、減圧留去した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体4の白色固体 (5.9g、収率80%) を得た。

30

【0080】

(5) 中間体5の合成

100mlナスフラスコに、中間体4 (5.9g、0.017mol) およびNBS (0.9eq.) を含むDMF (30ml) 溶液を加えて、窒素雰囲気下、60℃で8時間加熱撹拌した。

その後、室温 (25℃) まで戻し、溶液を分液ロートに移して抽出を行った。酢酸エチルと飽和食塩水を加えて有機相と水相に分離した後、有機相を取り出し、減圧留去した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、中間体5の白色固体 (3.2g、収率44%) を得た。

40

【0081】

(6) 例示化合物 (13) の合成

50mlナスフラスコに、中間体5 (3.0g、0.0085mol)、 δ -カルボリン

50

ン (1.1 eq.)、 K_3PO_4 (3 eq.)、 Cu_2O (0.2 eq.) およびジピバロイルメタン (0.5 eq.) を含む DMSO (30 ml) 溶液を加えて、窒素雰囲気下、150℃で15時間還流した。

その後、室温 (25℃) まで戻し、溶液を分液ロートに移して抽出を行った。酢酸エチルと飽和食塩水を加えて有機相と水相に分離した後、有機相を取り出し、減圧留去した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、例示化合物 (13) の白色固体 (3.0 g、収率 67%) を得た。

【0082】

[導電性層]

導電性層 1b は、銀を主成分として構成されている層であって、中間層 1a 上に成膜された層である。

このような導電性層 1b の成膜方法としては、塗布法、インクジェット法、コーティング法、ディップ法等のウェットプロセスを用いる方法や、蒸着法 (抵抗加熱、EB 法等)、スパッタ法、CVD 法等のドライプロセスを用いる方法等が挙げられる。中でも蒸着法が好ましく適用される。

また、導電性層 1b は、中間層 1a 上に成膜されることにより、導電性層成膜後の高温アニール処理 (たとえば、150℃以上の加熱プロセス) 等がなくても十分に導電性を有することを特徴とするが、必要に応じて、成膜後に高温アニール処理等を行ったものであってもよい。

【0083】

導電性層 1b は、銀 (Ag) を含有する合金から構成されていてもよく、そのような合金としては、たとえば、銀マグネシウム (AgMg)、銀銅 (AgCu)、銀パラジウム (AgPd)、銀パラジウム銅 (AgPdCu)、銀インジウム (AgIn) 等が挙げられる。

【0084】

以上のような導電性層 1b は、銀を主成分として構成されている層が、必要に応じて複数の層に分けて積層された構成であってもよい。

【0085】

さらに、この導電性層 1b は、層厚が 5~20 nm の範囲内にあることが好ましく、5~12 nm の範囲内にあることがより好ましい。

層厚が 20 nm より薄いと、層の吸収成分または反射成分が少なくなり、透明電極の透過率が向上するためより好ましい。また、層厚が 5 nm より厚いと、層の導電性が十分になるため好ましい。

【0086】

なお、以上のような中間層 1a とこの上部に成膜された導電性層 1b とからなる積層構造の透明電極 1 は、導電性層 1b の上部が保護膜で覆われていてもよいし、別の導電性層が積層されていてもよい。この場合、透明電極 1 の光透過性を損なうことのないように、保護膜および別の導電性層が光透過性を有することが好ましい。また、中間層 1a の下部、すなわち中間層 1a と基材 11 との間にも、必要に応じた層を設けた構成としてもよい。

【0087】

<透明電極の効果>

以上のような構成の透明電極 1 は、双極子モーメントが 5.0~25.0 デバイの範囲内である有機化合物を用いて構成されている中間層 1a 上に、銀を主成分として構成されている導電性層 1b を設けた構成である。これにより、中間層 1a の上部に導電性層 1b を成膜する際には、導電性層 1b を構成する銀原子が中間層 1a を構成する有機化合物と相互作用し、銀原子の中間層 1a 表面における拡散距離が減少し、銀の凝集が抑えられる。

【0088】

ここで、一般的に銀を主成分として構成されている導電性層の成膜においては、島状成

10

20

30

40

50

長型（V o l u m e r－W e b e r：V W型）で薄膜成長するため、銀粒子が島状に孤立し易く、層厚が薄いときは導電性を得ることが困難であり、シート抵抗値が高くなる。

したがって、導電性を確保するには層厚を厚くする必要があるが、層厚を厚くすると光透過率が下がるため、透明電極としては不適であった。

【0089】

しかしながら、本発明構成の透明電極1によれば、上述したように中間層1a上において銀の凝集が抑えられるため、銀を主成分として構成されている導電性層1bの成膜においては、層状成長型（F r a n k－v a n d e r M e r w e：F M型）で薄膜成長するようになる。

【0090】

ここで、本発明の透明電極1の透明とは波長550nmでの光透過率が50%以上であることをいうが、中間層1aとして用いられる上述した各材料は、銀を主成分とした導電性層1bと比較して、十分に光透過性の良好な膜を形成する。一方、透明電極1の導電性は、主に、導電性層1bによって確保される。したがって、上述のように、銀を主成分として構成されている導電性層1bが、より薄い層厚で導電性が確保されたものとなることにより、透明電極1の導電性の向上と光透過性の向上との両立を図ることが可能になるのである。

【0091】

≪2. 透明電極の用途≫

上述した構成の透明電極1は、各種電子デバイスに用いることができる。電子デバイスの例としては、有機EL素子、LED（l i g h t E m i t t i n g D i o d e）、液晶素子、太陽電池、タッチパネル等が挙げられ、これらの電子デバイスにおいて光透過性を必要とされる電極部材として、上述の透明電極1を用いることができる。

以下では、用途の一例として、本発明の透明電極1を用いた有機EL素子の実施の形態を説明する。

【0092】

≪3. 有機EL素子の第1例≫

<有機EL素子の構成>

図8は、本発明の電子デバイスの一例として、上述した透明電極1を用いた有機EL素子の第1例を示す概略断面図である。

以下に、この図に基づいて有機EL素子の構成を説明する。

【0093】

図8に示すとおり、有機EL素子100は、透明基板（基材）13上に設けられており、透明基板13側から順に、透明電極1、有機材料等を用いて構成された発光機能層3、および対向電極5aをこの順に積層して構成されている。この有機EL素子100においては、透明電極1として、先に説明した本発明の透明電極1を用いている。このため、有機EL素子100は、発生させた光（以下、発光光hと記す。）を、少なくとも透明基板13側から取り出すように構成されている。

【0094】

また、有機EL素子100の層構造は以下に説明する例に限定されることはなく、一般的な層構造であってもよい。ここでは、透明電極1がアノード（すなわち陽極）として機能し、対向電極5aがカソード（すなわち陰極）として機能することとする。この場合、たとえば、発光機能層3は、アノードである透明電極1側から順に正孔注入層3a／正孔輸送層3b／発光層3c／電子輸送層3d／電子注入層3eを積層した構成が例示されるが、このうち少なくとも有機材料を用いて構成された発光層3cを有することが必須である。正孔注入層3aおよび正孔輸送層3bは、正孔輸送注入層として設けられていてもよい。電子輸送層3dおよび電子注入層3eは、電子輸送注入層として設けられていてもよい。また、これらの発光機能層3のうち、たとえば、電子注入層3eは無機材料で構成されているものとしてもよい。

【0095】

また、発光機能層 3 は、これらの層の他に正孔阻止層や電子阻止層等が必要に応じて必要箇所に積層されていてもよい。さらに、発光層 3 c は、各波長領域の発光光を発生させる各色発光層を有し、これらの各色発光層を、非発光性の補助層を介して積層させた構造としてもよい。補助層は、正孔阻止層、電子阻止層として機能してもよい。さらに、カソードである対向電極 5 a も、必要に応じた積層構造であってもよい。このような構成においては、透明電極 1 と対向電極 5 a とで発光機能層 3 が挟持された部分のみが、有機 EL 素子 100 における発光領域となる。

【0096】

また、以上のような層構成においては、透明電極 1 の低抵抗化を図ることを目的とし、透明電極 1 の導電性層 1 b に接して補助電極 15 が設けられていてもよい。

10

【0097】

以上のような構成の有機 EL 素子 100 は、有機材料等を用いて構成された発光機能層 3 の劣化を防止することを目的として、透明基板 13 上において後述する封止材 17 で封止されている。この封止材 17 は、接着剤 19 を介して透明基板 13 側に固定されている。ただし、透明電極 1 および対向電極 5 a の端子部分は、透明基板 13 上において発光機能層 3 によって互いに絶縁性を保った状態で封止材 17 から露出させた状態で設けられていることとする。

【0098】

以下、上述した有機 EL 素子 100 を構成するための主要各層の詳細を、透明基板 13、透明電極 1、対向電極 5 a、発光機能層 3 の発光層 3 c、発光機能層 3 の他の層、補助電極 15、および封止材 17 の順に説明する。

20

【0099】

[透明基板]

透明基板 13 は、先に説明した本発明の透明電極 1 が設けられる基材 11 であり、先に説明した基材 11 のうち光透過性を有する透明な基材 11 が用いられる。

【0100】

[透明電極（アノード）]

透明電極 1 は、先に説明した本発明の透明電極 1 であり、透明基板 13 側から順に中間層 1 a および導電性層 1 b を順に成膜した構成である。ここでは特に、透明電極 1 はアノードとして機能するものであり、導電性層 1 b が実質的なアノードとなる。

30

【0101】

[対向電極（カソード）]

対向電極 5 a は、発光機能層 3 に電子を供給するカソードとして機能する電極膜であり、金属、合金、有機もしくは無機の導電性化合物、またはこれらの混合物等から構成されている。具体的には、アルミニウム、銀、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、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属、ITO、ZnO、TiO₂、SnO₂ 等の酸化物半導体等が挙げられる。

【0102】

対向電極 5 a は、これらの導電性材料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、対向電極 5 a としてのシート抵抗値は、数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常 5 nm～5 μm、好ましくは 5～200 nm の範囲内で選ばれる。

40

【0103】

なお、この有機 EL 素子 100 が、対向電極 5 a 側からも発光光 h を取り出すものである場合には、上述した導電性材料のうちから選択される光透過性の良好な導電性材料により対向電極 5 a が構成されていればよい。

【0104】

[発光層]

本発明に用いられる発光層 3 c は、発光材料が含有されているが、中でも発光材料とし

50

てリン光発光性化合物（リン光発光材料、リン光発光化合物、リン光性化合物）が含有されていることが好ましい。

【0105】

この発光層3cは、電極または電子輸送層3dから注入された電子と、正孔輸送層3bから注入された正孔とが再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層3cの層内であっても発光層3cと隣接する層との界面であってもよい。

【0106】

このような発光層3cとしては、含まれる発光材料が発光要件を満たしていれば、その構成には特に制限はない。また、同一の発光スペクトルや発光極大波長を有する層が複数層あってもよい。この場合、各発光層3c間には非発光性の補助層（図示せず）を有して

10

【0107】

発光層3cの層厚の総和は、好ましくは、1～100nmの範囲内であり、さらに好ましくは、より低い駆動電圧を得ることができることから1～30nmの範囲内である。なお、発光層3cの層厚の総和とは、発光層3c間に非発光性の補助層が存在する場合には、当該補助層も含む層厚である。

【0108】

複数層を積層した構成の発光層3cの場合、個々の発光層の層厚としては、1～50nmの範囲内に調整することが好ましく、1～20nmの範囲内に調整することがより好ましい。積層された複数の発光層が、青、緑、赤のそれぞれの発光色に対応する場合、青、

20

【0109】

以上のように構成されている発光層3cは、後述する発光材料やホスト化合物を、たとえば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜形成方法により成膜して形成することができる。

【0110】

また発光層3cは、複数の発光材料が混合されて構成されていてもよく、また、リン光発光性化合物と蛍光性化合物（蛍光発光材料、蛍光ドーパント）とが混合されて構成されていてもよい。

【0111】

発光層3cの構成として、ホスト化合物（発光ホスト）、発光材料（発光ドーパント化合物）を含有し、発光材料より発光させることが好ましい。

30

【0112】

（ホスト化合物）

発光層3cに含有されるホスト化合物としては、室温（25℃）におけるリン光発光のリン光量子収率が0.1未満の化合物が好ましい。さらに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3cに含有される化合物の中で、その層中での体積比が50%以上であることが好ましい。

【0113】

ホスト化合物としては、公知のホスト化合物を単独で用いてもよく、または複数種用いてもよい。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、後述する発光材料を複数種用いることで、異なる発光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。

40

【0114】

用いられるホスト化合物としては、従来公知の低分子化合物でも、繰り返し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（蒸着重合性発光ホスト）でもよい。

【0115】

公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、発光の長波長化を

50

防ぎ、かつ高 T_g （ガラス転移温度）の化合物が好ましい。

ここでいうガラス転移温度とは、DSC（Differential Scanning Calorimetry：示差走査熱量法）を用いて、JIS K 7121に準拠した方法により求められる値である。

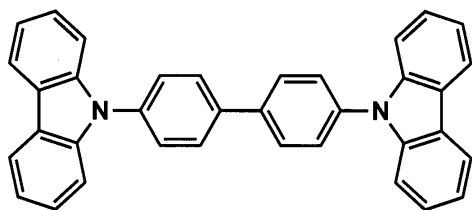
【0116】

以下に、本発明で用いることのできるホスト化合物の具体例（H1～H79）を示すが、これらに限定されない。なお、ホスト化合物H68における x および y 、ホスト化合物H69における p 、 q および r はランダム共重合体の比率を表す。その比率は、たとえば、 $x:y=1:10$ 等とすることができる。

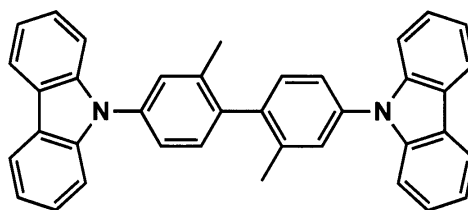
【0117】

【化 1 2】

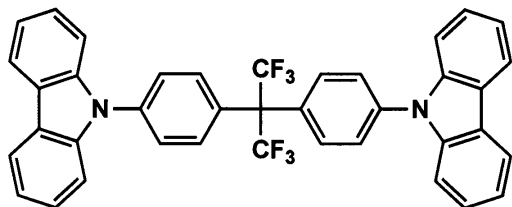
H1



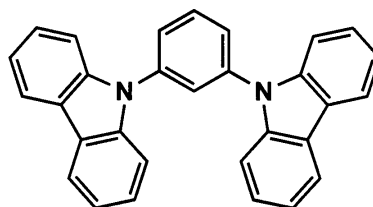
H2



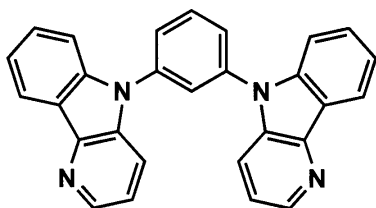
H3



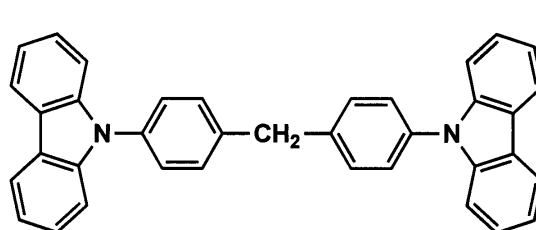
H4



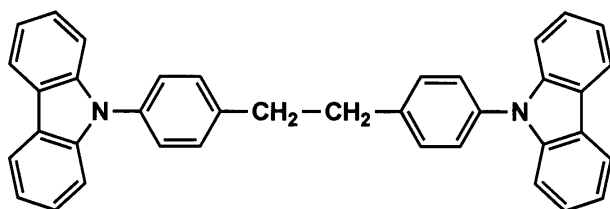
H5



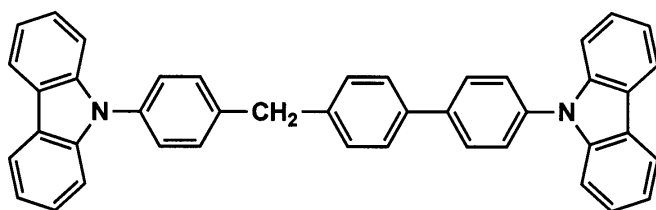
H6



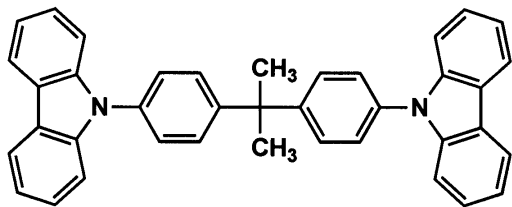
H7



H8



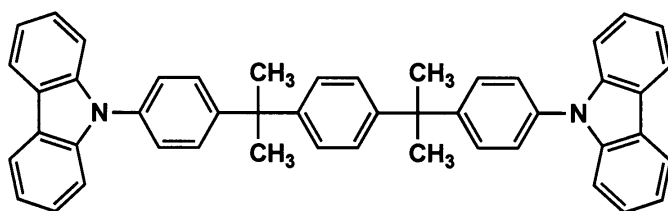
H9



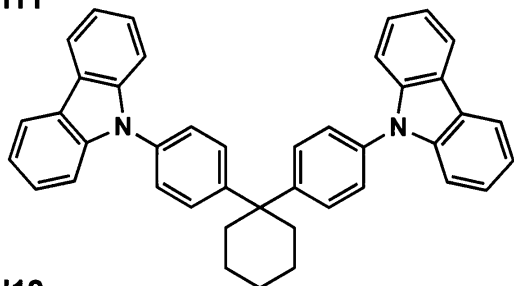
【 0 1 1 8】

【化 1 3】

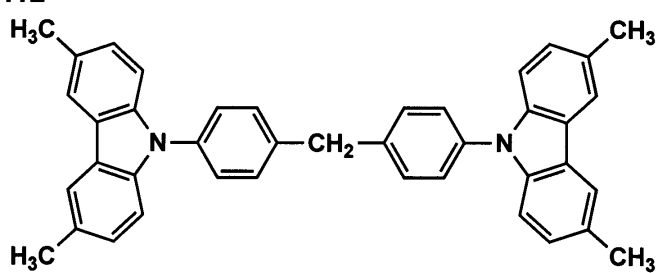
H10



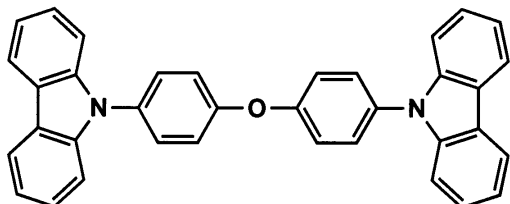
H11



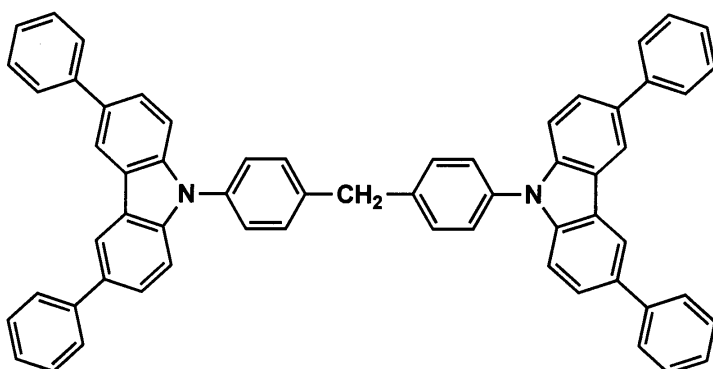
H12



H13



H14



【 0 1 1 9】

10

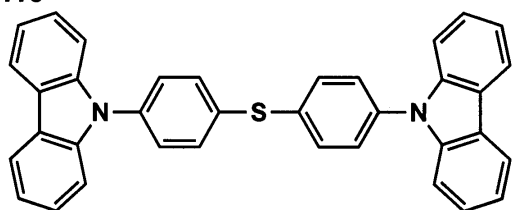
20

30

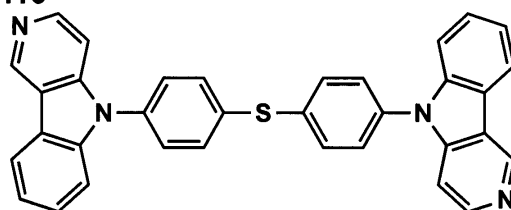
40

【化 1 4】

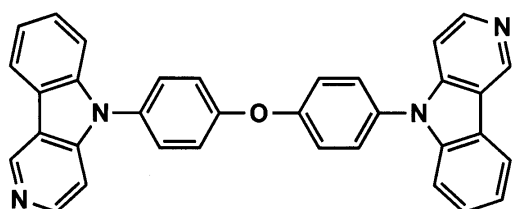
H15



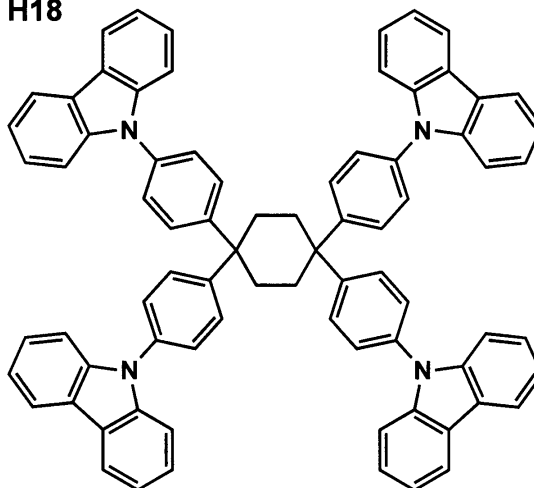
H16



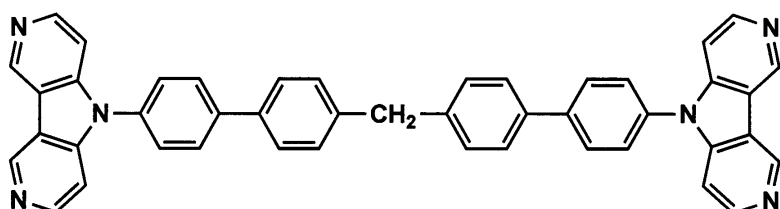
H17



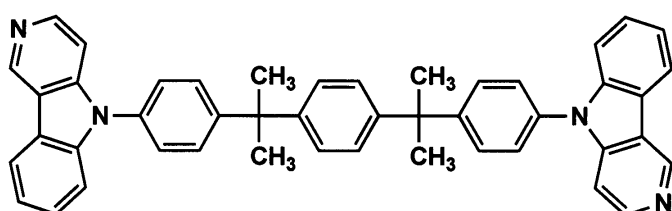
H18



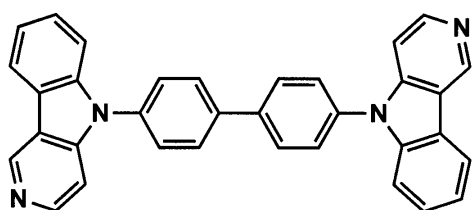
H19



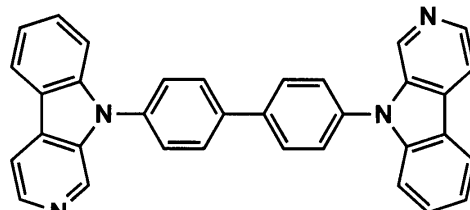
H20



H21



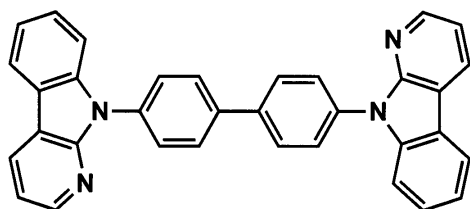
H22



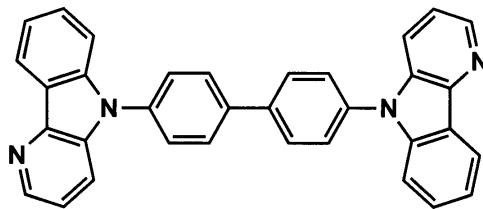
【 0 1 2 0 】

【化 1 5】

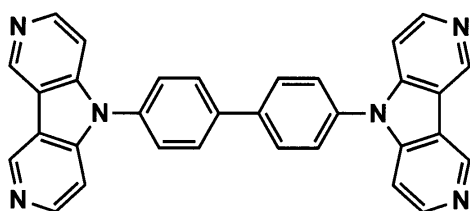
H23



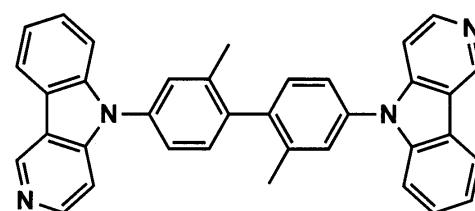
H24



H25

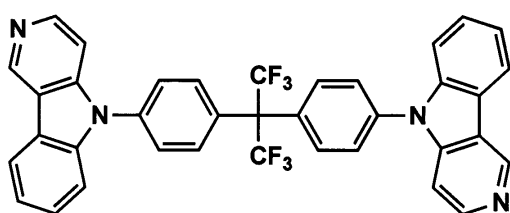


H26

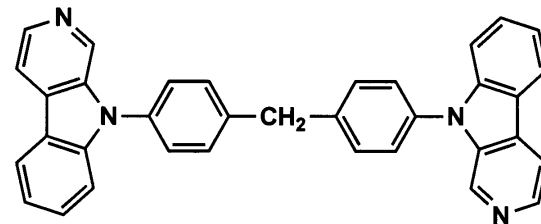


10

H27

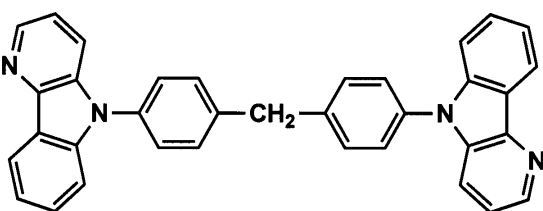


H28

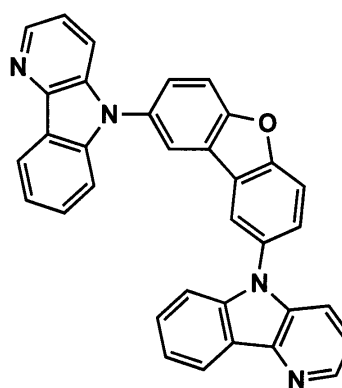


20

H29



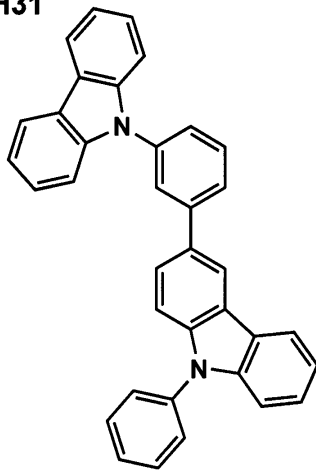
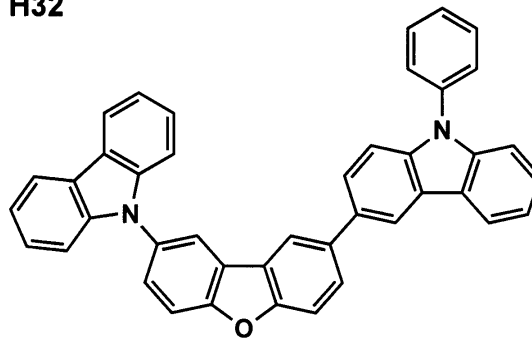
H30



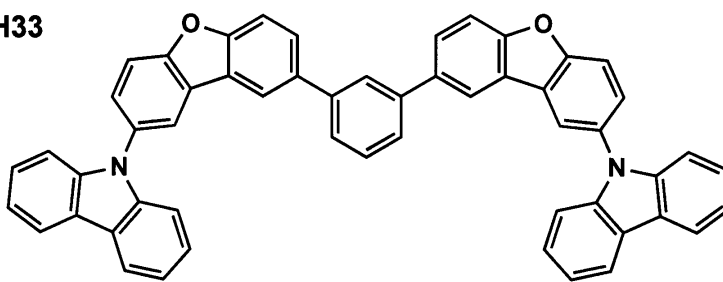
30

【 0 1 2 1】

【化 1 6】

H31**H32**

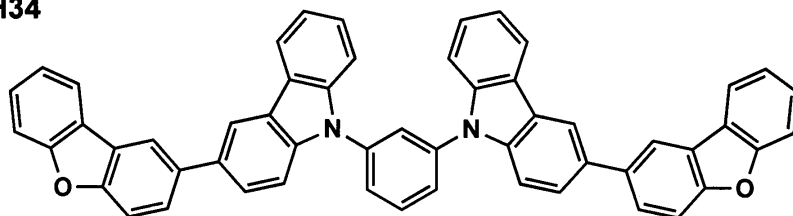
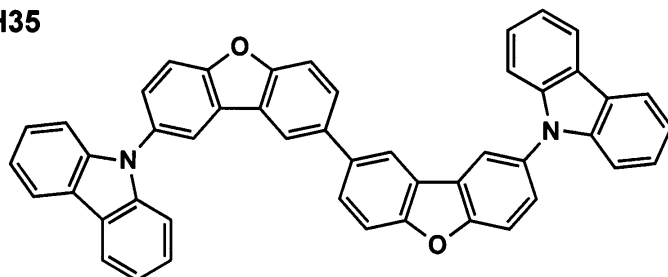
10

H33

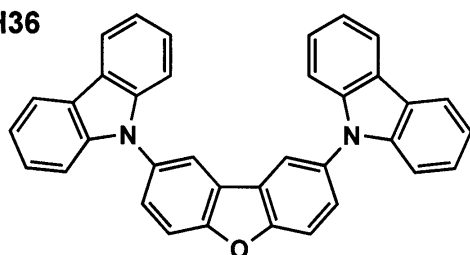
20

【 0 1 2 2 】

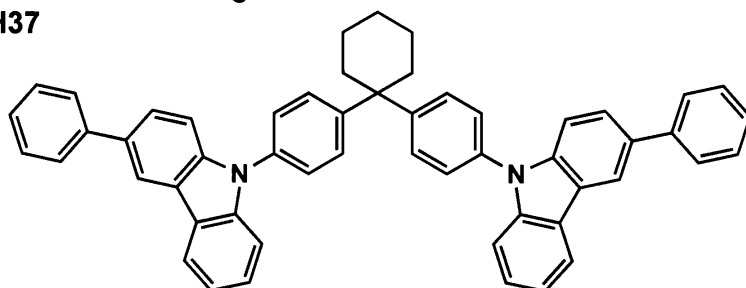
【化 1 7】

H34**H35**

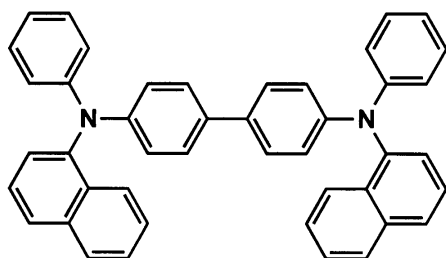
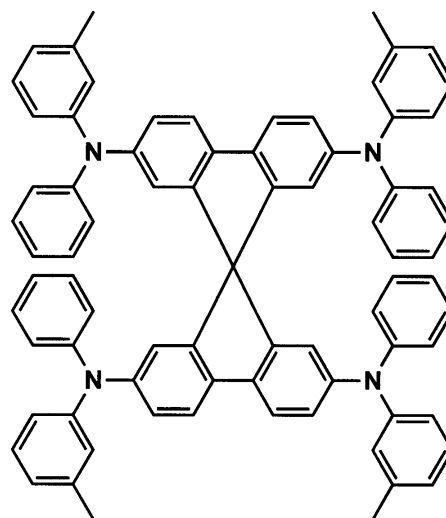
10

H36

20

H37

30

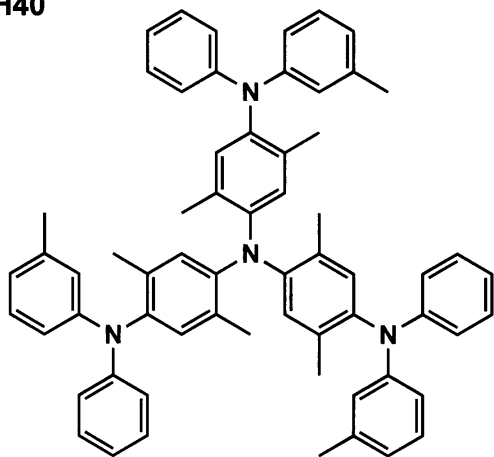
H38**H39**

40

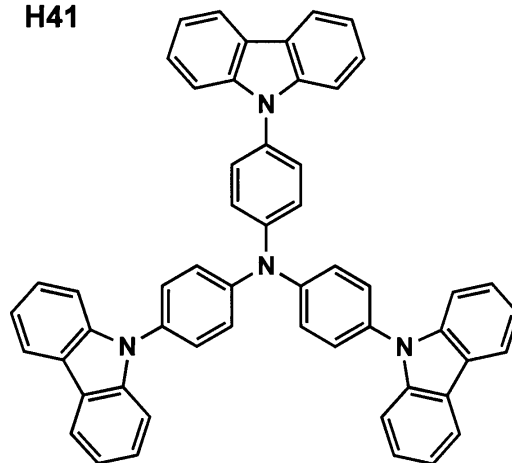
【 0 1 2 3】

【化 1 8】

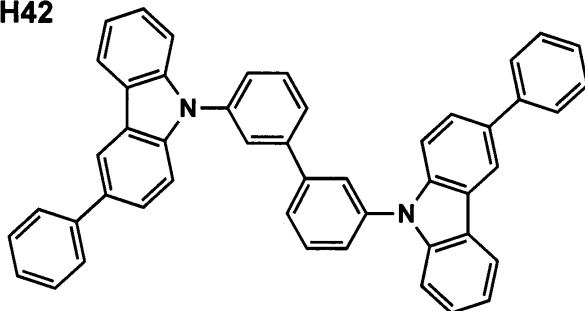
H40



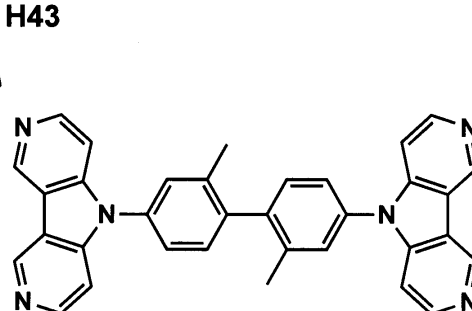
H41



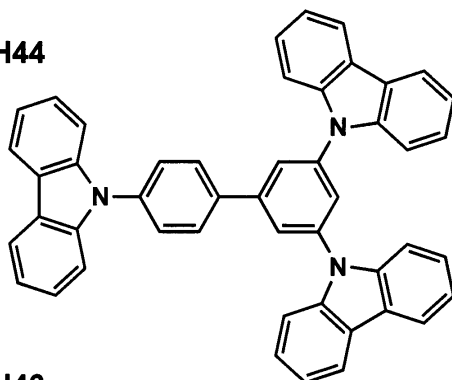
H42



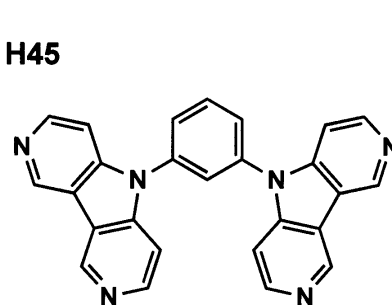
H43



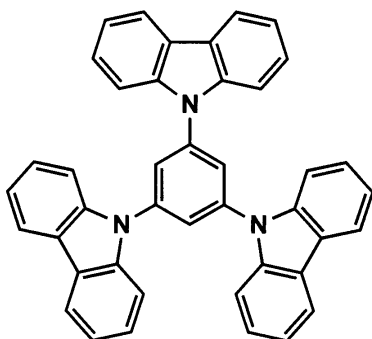
H44



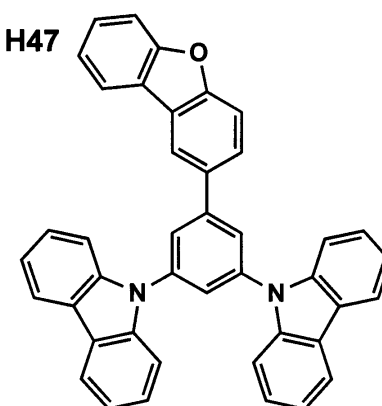
H45



H46



H47



【 0 1 2 4】

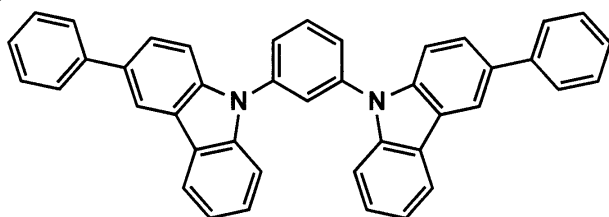
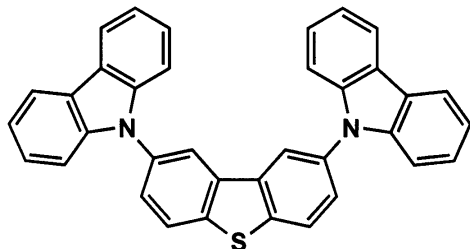
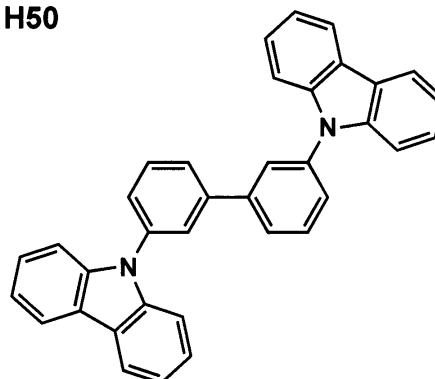
10

20

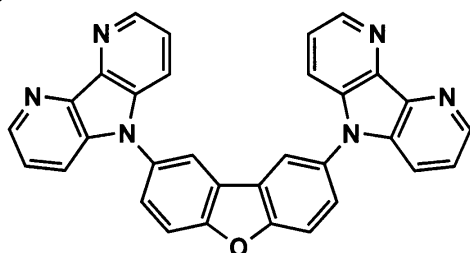
30

40

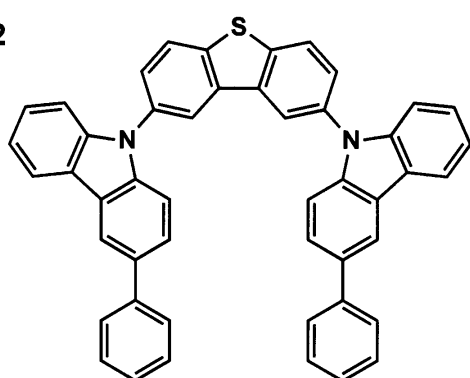
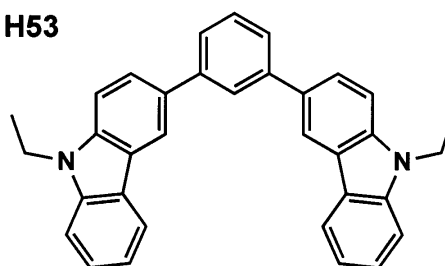
【化 1 9】

H48**H49****H50**

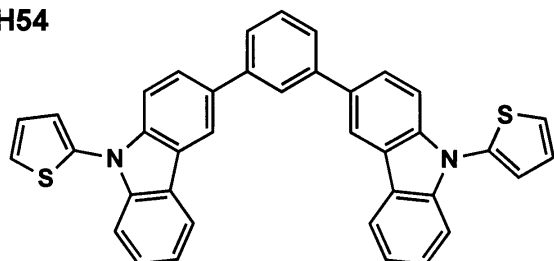
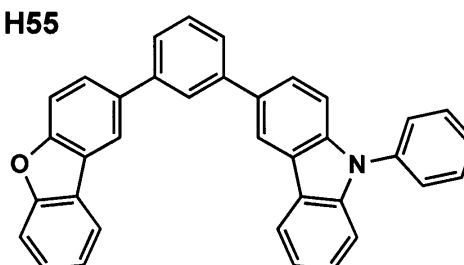
10

H51

20

H52**H53**

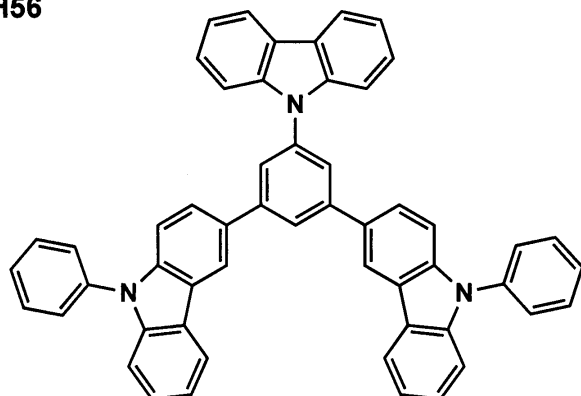
30

H54**H55**

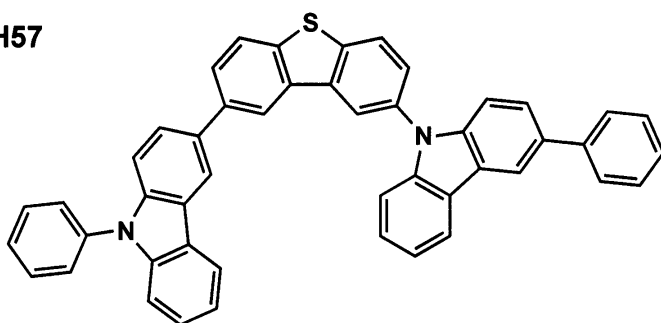
40

【 0 1 2 5】

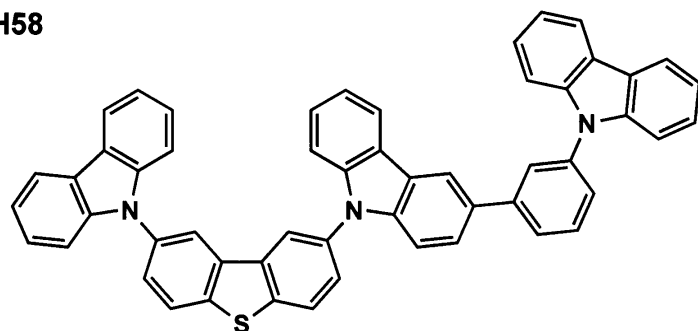
【化 2 0】

H56

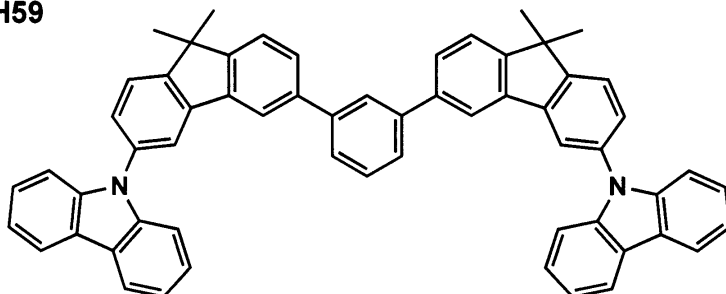
10

H57

20

H58

30

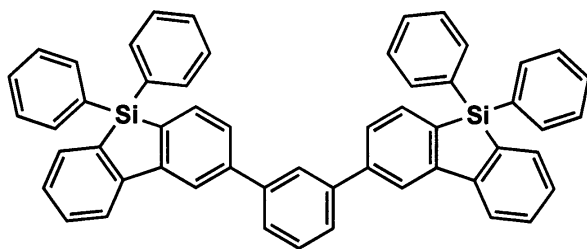
H59

40

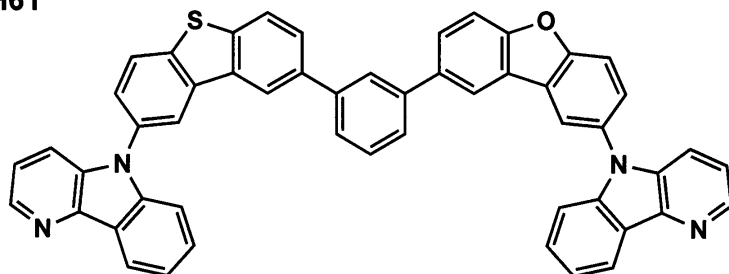
【 0 1 2 6】

【化 2 1】

H60

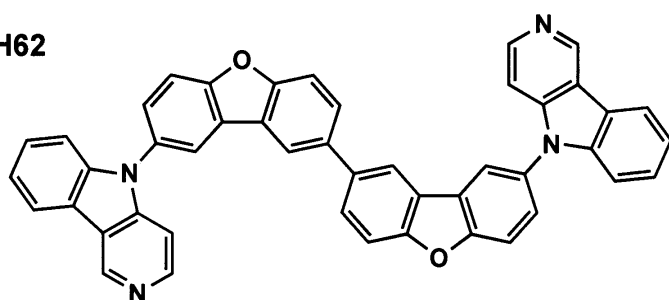


H61



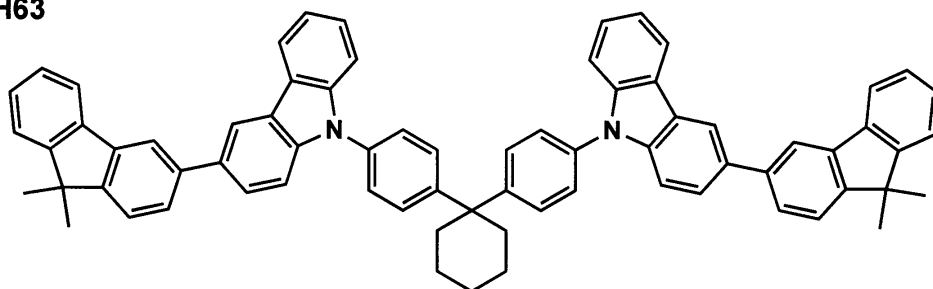
10

H62



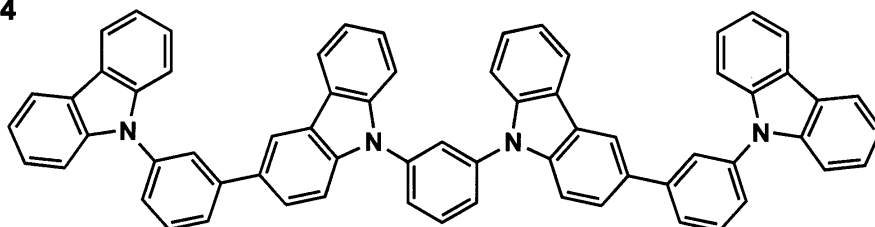
20

H63



30

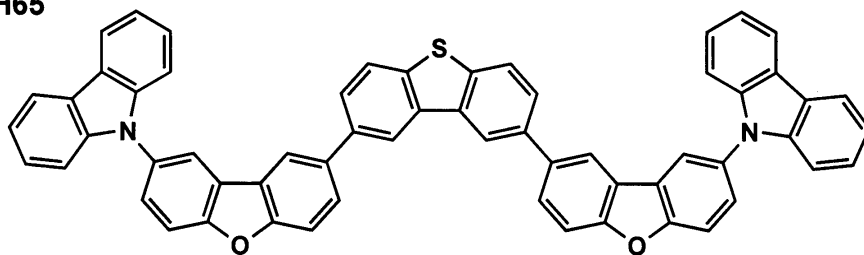
H64



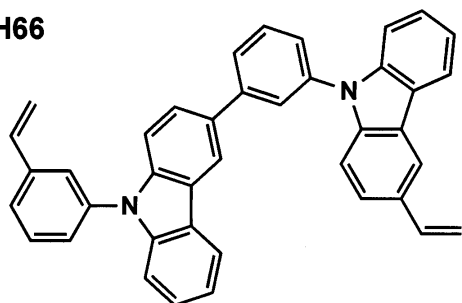
40

【 0 1 2 7】

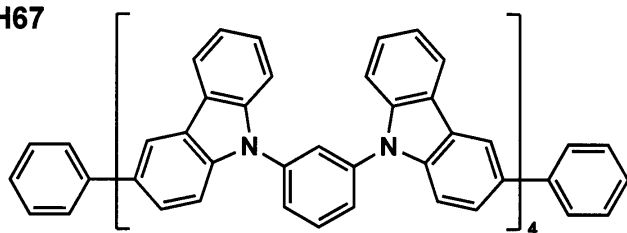
H65



10

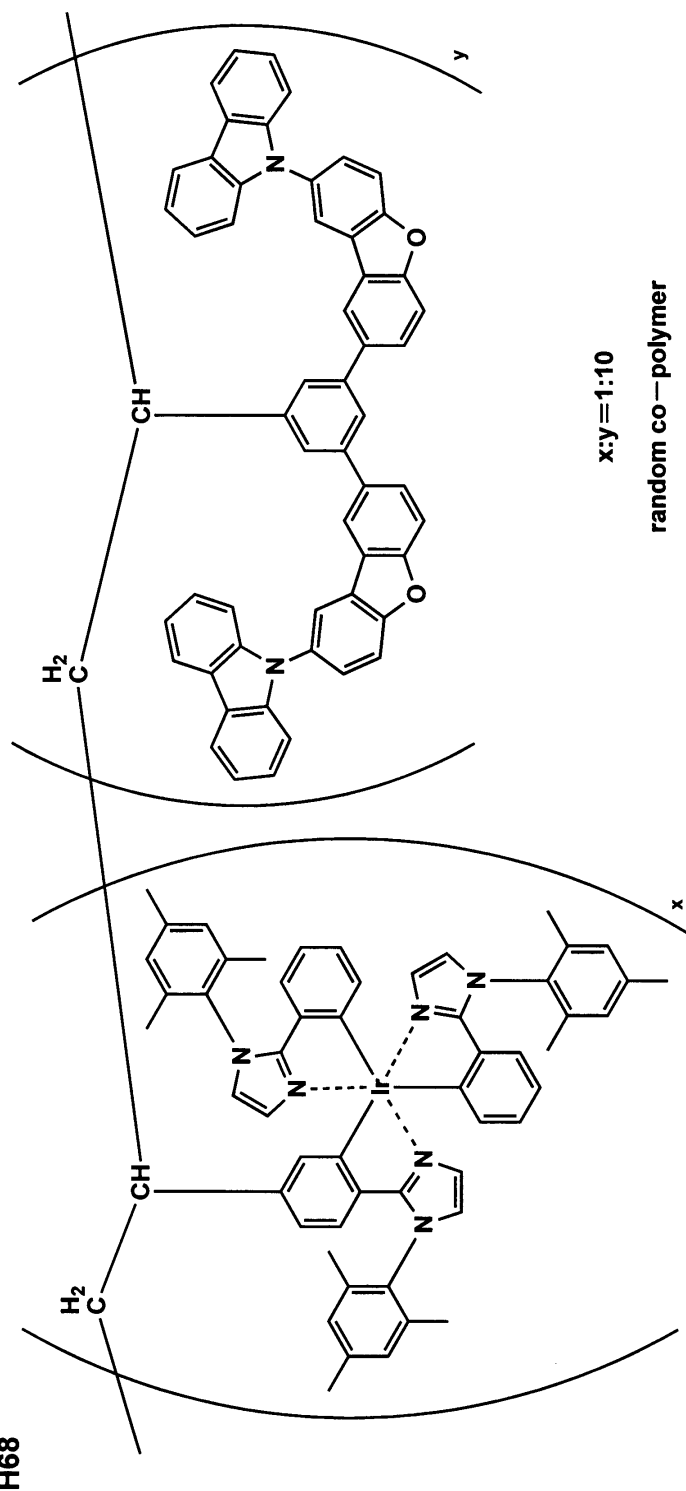


20



【 0 1 2 8 】

【化 2 3】



【 0 1 2 9】

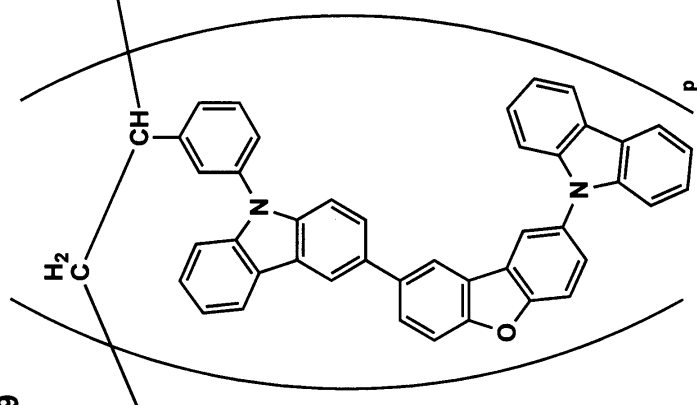
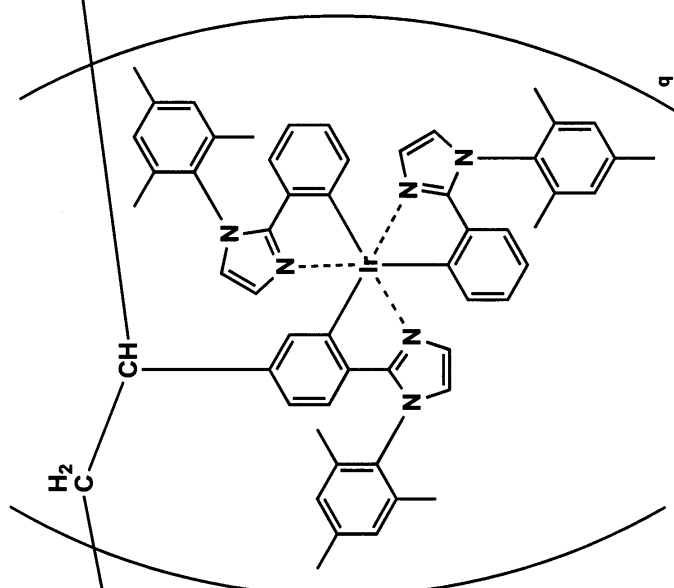
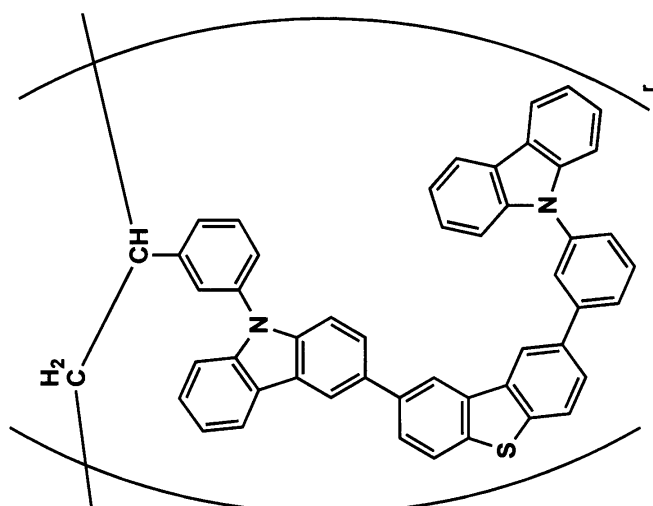
10

20

30

40

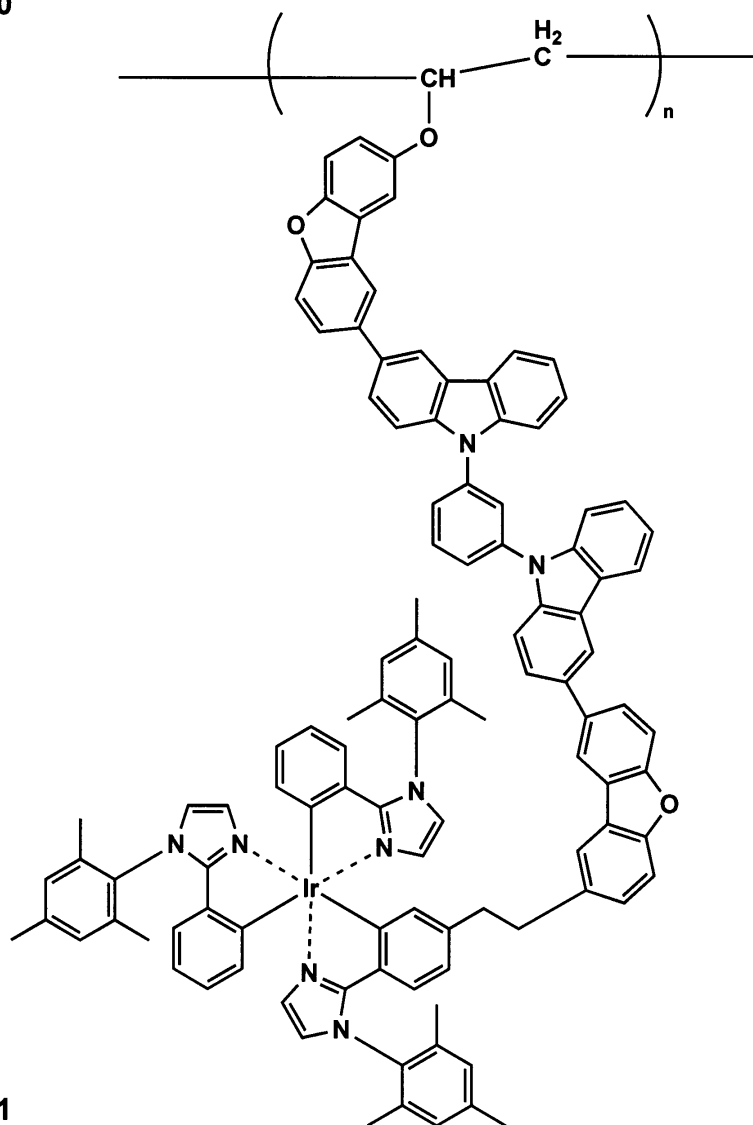
【化 2 4】



H69

【0 1 3 0】

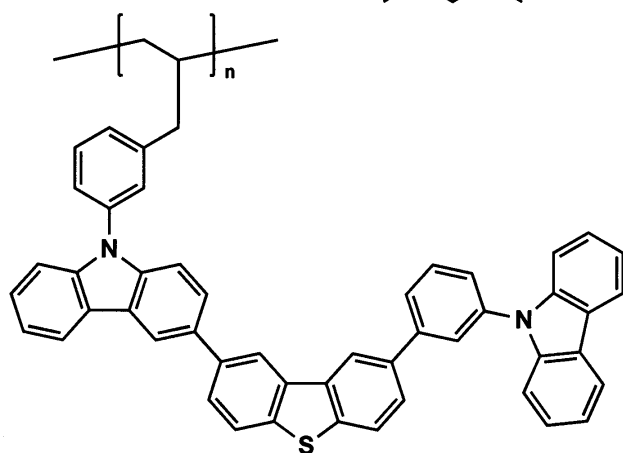
【化 2 5】

H70

10

20

30

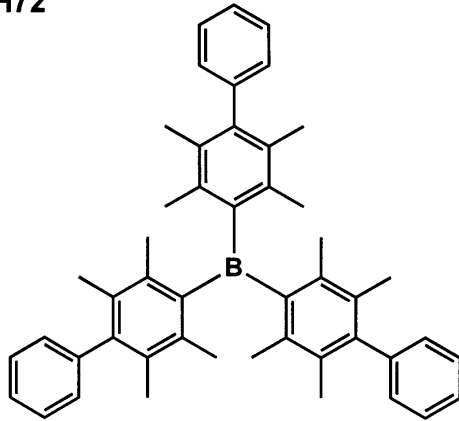
H71

40

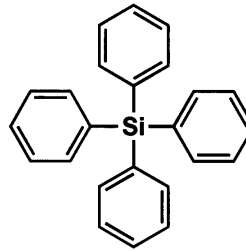
【0 1 3 1】

【化 2 6】

H72

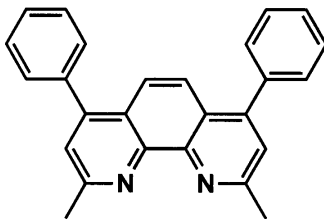


H73

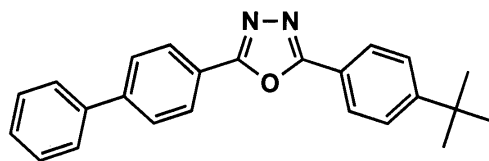


10

H74

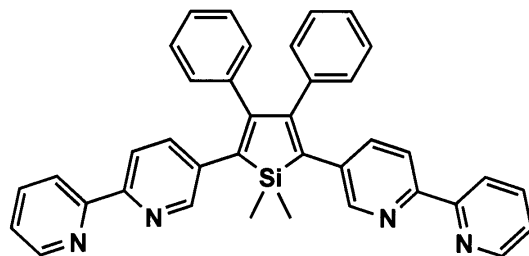


H75

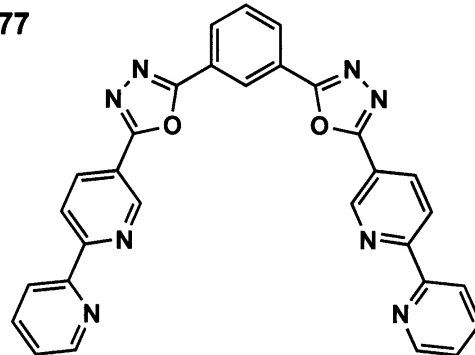


20

H76

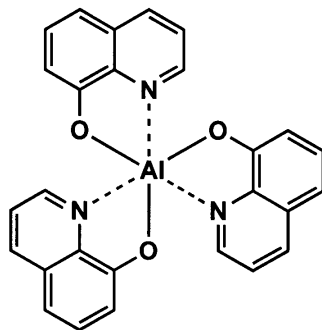


H77

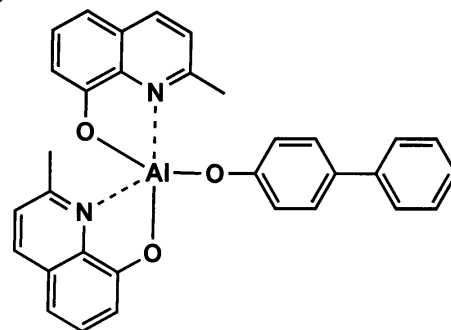


30

H78



H79



40

【0132】

公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合物を用いることもできる。たとえば、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 2002-105

50

445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、同2002-308837号公報等が挙げられる。

【0133】

(発光材料)

10

(1) リン光発光性化合物

本発明で用いることのできる発光材料としては、リン光発光性化合物が挙げられる。

【0134】

リン光発光性化合物とは、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℃)にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が25℃において0.01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。

【0135】

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、本発明においてリン光発光性化合物を用いる場合、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。

20

【0136】

リン光発光性化合物の発光の原理としては2種挙げられる。

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発光性化合物に移動させることでリン光発光性化合物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、リン光発光性化合物がキャリトラップとなり、リン光発光性化合物上でキャリアの再結合が起こりリン光発光性化合物からの発光が得られるというキャリトラップ型である。

30

いずれの場合においても、リン光発光性化合物の励起状態のエネルギーは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となる。

【0137】

リン光発光性化合物は、一般的な有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができるが、好ましくは元素の周期表で8~10族の金属を含有する錯体系化合物であり、さらに好ましくはイリジウム化合物、オスmium化合物、または白金化合物(白金錯体系化合物)、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

【0138】

本発明においては、少なくとも一つの発光層3cに2種以上のリン光発光性化合物が含有されていてもよく、発光層3cにおけるリン光発光性化合物の濃度比が発光層3cの厚さ方向で変化していてもよい。

40

【0139】

リン光発光性化合物は、好ましくは発光層3cの総量に対し、0.1体積%以上30体積%未満である。

【0140】

(1.1) 一般式(A)で表される化合物

発光層3cに含まれる化合物(リン光発光性化合物)は、下記一般式(A)で表される化合物であることが好ましい。

【0141】

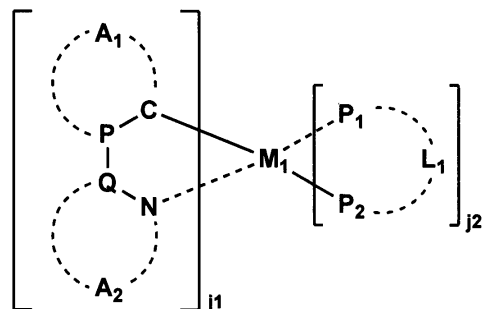
50

なお、一般式 (A) で表されるリン光発光性化合物 (リン光発光性の金属錯体ともいう。) は、有機 EL 素子 100 の発光層 3c に発光ドーパントとして含有されることが好ましい態様であるが、発光層 3c 以外の発光機能層に含有されていてもよい。

【0142】

【化27】

一般式(A)



10

【0143】

一般式 (A) 中、P および Q は、それぞれ独立に炭素原子または窒素原子を表す。A₁ は、P-C と共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A₂ は、Q-N と共に芳香族複素環を形成する原子群を表す。P₁-L₁-P₂ は、2 座の配位子を表し、P₁ および P₂ は、それぞれ独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L₁ は、P₁、P₂ と共に 2 座の配位子を形成する原子群を表す。j₁ は 1~3 の整数を表し、j₂ は 0~2 の整数を表すが、j₁ + j₂ は 2 または 3 である。M₁ は、元素周期表における 8 族~10 族の遷移金属元素を表す。

20

【0144】

一般式 (A) において、A₁ が P-C と共に形成する芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、o-テルフェニル環、m-テルフェニル環、p-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。

30

これらの環は、さらに、一般式 (I) において R₁ で表される置換基を有していてもよい。

【0145】

一般式 (A) において、A₁ が P-C と共に形成する芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環等が挙げられる。

40

ここで、アザカルバゾール環とは、カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が一つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

これらの環は、さらに、一般式 (I) において R₁ で表される置換基を有していてもよい。

【0146】

一般式 (A) において、A₂ が Q-N と共に形成する芳香族複素環としては、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

50

これらの環は、さらに、一般式 (I) において R_1 で表される置換基を有していてもよい。

【0147】

$P_1-L_1-P_2$ で表される 2 座の配位子としては、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、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。

【0148】

一般式 (A) において、 j_2 は 0 ~ 2 の整数を表すが、中でも、 j_2 は 0 である場合が好ましい。

【0149】

一般式 (A) において、 M_1 は元素周期表における 8 族 ~ 10 族の遷移金属元素（単に遷移金属ともいう。）が用いられるが、中でも、イリジウムが好ましい。

【0150】

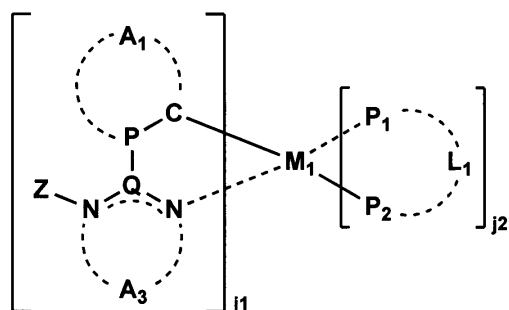
(1. 2) 一般式 (B) で表される化合物

上記一般式 (A) で表される化合物は、下記一般式 (B) で表される化合物であることが好ましい。

【0151】

【化28】

一般式(B)



【0152】

一般式 (B) 中、Z は、炭化水素環基または複素環基を表す。P および Q は、それぞれ独立に炭素原子または窒素原子を表す。A₁ は、P-C と共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A₃ は、 $-C(R_{01})=C(R_{02})-$ 、 $-N=C(R_{02})-$ 、 $-C(R_{01})=N-$ または $-N=N-$ を表し、 R_{01} および R_{02} は、それぞれ独立に水素原子または置換基を表す。 $P_1-L_1-P_2$ は、2 座の配位子を表し、 P_1 および P_2 は、それぞれ独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。 L_1 は、 P_1 、 P_2 と共に 2 座の配位子を形成する原子群を表す。 j_1 は 1 ~ 3 の整数を表し、 j_2 は 0 ~ 2 の整数を表すが、 $j_1 + j_2$ は 2 または 3 である。 M_1 は、元素周期表における 8 族 ~ 10 族の遷移金属元素を表す。

【0153】

一般式 (B) において、Z で表される炭化水素環基としては、非芳香族炭化水素環基、芳香族炭化水素環基が挙げられ、非芳香族炭化水素環基としては、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

これらの基は、無置換でもよく、一般式 (I) において R_1 で表される置換基を有していてもよい。

【0154】

また、芳香族炭化水素環基（芳香族炭化水素基、アリール基等ともいう。）としては、たとえば、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、ビフェニリル基等が挙げられる。

これらの基は、無置換でもよく、一般式 (I) において R_1 で表される置換基を有していてもよい。

【0155】

一般式 (B) において、Z で表される複素環基としては、非芳香族複素環基、芳香族複素環基等が挙げられ、非芳香族複素環基としては、たとえば、エポキシ環、アジリジン環、チイラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキソラン環、ピロリジン環、ピラゾリジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、 ϵ -カプロラクトン環、 ϵ -カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1, 3-ジオキサン環、1, 4-ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1, 1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ [2, 2, 2]-オクタン環等から導出される基を挙げられる。

10

これらの基は、無置換でもよく、一般式 (I) において R_1 で表される置換基を有していてもよい。

【0156】

芳香族複素環基としては、たとえば、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 (たとえば、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 (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、フタラジニル基等が挙げられる。

20

これらの基は、無置換でもよく、一般式 (I) において R_1 で表される置換基を有していてもよい。

【0157】

Z で表される基は、好ましくは芳香族炭化水素環基または芳香族複素環基である。

【0158】

一般式 (B) において、 A_1 が P-C と共に形成する芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、オーテルフェニル環、m-テルフェニル環、p-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペントセン環、ペリレン環、ペントフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。

30

これらの基は、無置換でもよく、一般式 (I) において R_1 で表される置換基を有していてもよい。

【0159】

一般式 (B) において、 A_1 が P-C と共に形成する芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、アザカルバゾール環等が挙げられる。

40

ここで、アザカルバゾール環とは、カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が一つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

これらの基は、無置換でもよく、一般式 (I) において R_1 で表される置換基を有していてもよい。

【0160】

50

一般式 (B) の A_3 で表される、 $-C(R_{01})=C(R_{02})-$ 、 $-N=C(R_{02})-$ 、 $-C(R_{01})=N-$ において、 R_{01} および R_{02} で各々表される置換基は、一般式 (I) において R_1 で表される置換基と同義である。

【0161】

一般式 (B) において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される 2 座の配位子としては、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、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。

【0162】

一般式 (B) において、 j_2 は 0～2 の整数を表すが、中でも、 j_2 は 0 である場合が好ましい。

10

【0163】

一般式 (B) において、 M_1 で表される元素周期表における 8 族～10 族の遷移金属元素は、一般式 (A) において、 M_1 で表される元素周期表における 8 族～10 族の遷移金属元素と同義である。

【0164】

(1. 3) 一般式 (C) で表される化合物

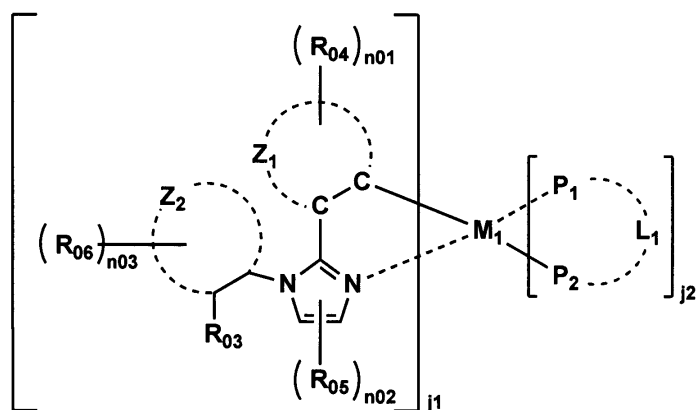
上記一般式 (B) で表される化合物は、下記一般式 (C) で表される化合物が好ましい。

【0165】

【化29】

20

一般式(C)



30

【0166】

一般式 (C) 中、 R_{03} は、置換基を表す。 R_{04} は、水素原子または置換基を表し、複数の R_{04} は、互いに結合して環を形成してもよい。 n_{01} は、1～4 の整数を表す。 R_{05} は、水素原子または置換基を表し、複数の R_{05} は、互いに結合して環を形成してもよい。 n_{02} は、1 または 2 を表す。 R_{06} は、水素原子または置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。 n_{03} は、1～4 の整数を表す。 Z_1 は、 $C-C$ と共に 6 員の芳香族炭化水素環または 5 員もしくは 6 員の芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 Z_2 は、炭化水素環基または複素環基を形成するのに必要な原子群を表す。 $P_1-L_1-P_2$ は、2 座の配位子を表し、 P_1 および P_2 は、それぞれ独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。 L_1 は、 P_1 、 P_2 と共に 2 座の配位子を形成する原子群を表す。 j_1 は 1～3 の整数を表し、 j_2 は 0～2 の整数を表すが、 j_1+j_2 は 2 または 3 である。 M_1 は、元素周期表における 8 族～10 族の遷移金属元素を表す。 R_{03} と R_{06} 、 R_{04} と R_{06} および R_{05} と R_{06} は、互いに結合して環を形成していてもよい。

40

【0167】

一般式 (C) において、 R_{03} 、 R_{04} 、 R_{05} および R_{06} で各々表される置換基は

50

、一般式 (I) において R_1 で表される置換基と同義である。

【0168】

一般式 (C) において、 Z_1 が C-C と共に形成する 6 員の芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環等が挙げられる。

これらの環は、さらに、置換基を有していてもよく、そのような置換基としては、一般式 (I) において R_1 で表される置換基と同様のものが挙げられる。

【0169】

一般式 (C) において、 Z_1 が C-C と共に形成する 5 員または 6 員の芳香族複素環としては、たとえば、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、チオフェン環、フラン環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

これらの環は、さらに、置換基を有していてもよく、そのような置換基としては、一般式 (I) において R_1 で表される置換基と同様のものが挙げられる。

【0170】

一般式 (C) において、 Z_2 で表される炭化水素環基としては、非芳香族炭化水素環基、芳香族炭化水素環基が挙げられ、非芳香族炭化水素環基としては、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

これらの基は、無置換でもよいし、置換基を有していてもよく、そのような置換基としては、一般式 (I) において R_1 で表される置換基と同様のものが挙げられる。

【0171】

また、芳香族炭化水素環基（芳香族炭化水素基、アリール基等ともいう。）としては、たとえば、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、ビフェニリル基等が挙げられる。

これらの基は、無置換でもよいし、置換基を有していてもよく、そのような置換基としては、一般式 (I) において R_1 で表される置換基と同様のものが挙げられる。

【0172】

一般式 (C) において、 Z_2 で表される複素環基としては、非芳香族複素環基、芳香族複素環基等が挙げられ、非芳香族複素環基としては、たとえば、エポキシ環、アジリジン環、チイラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキサラン環、ピロリジン環、ピラゾリジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、 ϵ -カプロラクトン環、 ϵ -カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1, 3-ジオキサラン環、1, 4-ジオキサラン環、トリオキサラン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1, 1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ [2, 2, 2]-オクタン環等から導出される基を挙げることができる。

これらの基は無置換でもよいし、置換基を有していてもよく、そのような置換基としては、一般式 (I) において R_1 で表される置換基と同様のものが挙げられる。

【0173】

芳香族複素環基としては、たとえば、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（たとえば、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（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、フタラジニル基等が挙げられる。

これらの環は無置換でもよいし、置換基を有していてもよく、そのような置換基としては、一般式 (I) において R_1 で表される置換基と同様のものが挙げられる。

【0174】

一般式 (C) において、 Z_1 および Z_2 で形成される基としては、ベンゼン環が好ましい。

【0175】

一般式 (C) において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される2座の配位子は、一般式 (A) において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される2座の配位子と同義である。

【0176】

一般式 (C) において、 M_1 で表される元素周期表における8族～10族の遷移金属元素は、一般式 (A) において、 M_1 で表される元素周期表における8族～10族の遷移金属元素と同義である。

【0177】

また、リン光発光性化合物は、有機EL素子100の発光層3cに使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。

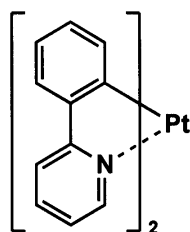
【0178】

本発明にかかるリン光発光性化合物の具体例 (Pt-1～Pt-3、A-1、Ir-1～Ir-45) を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。なお、これらの化合物において、 m および n は繰り返し数を表す。

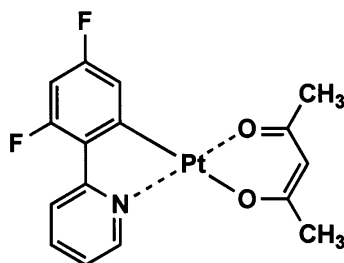
【0179】

【化30】

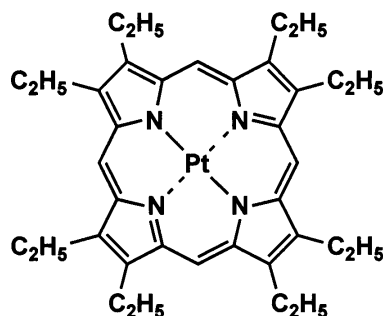
Pt-1



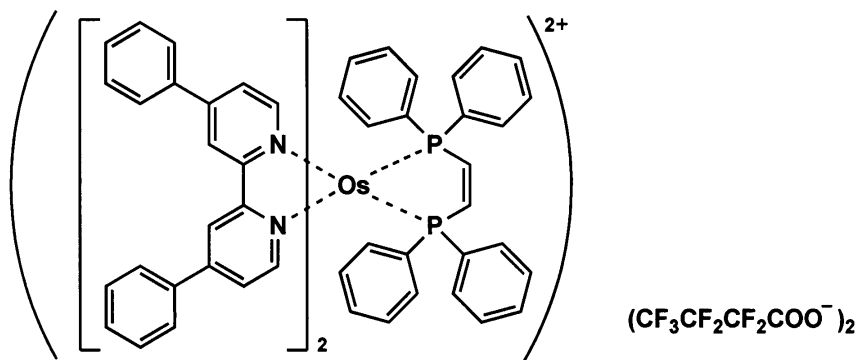
Pt-2



Pt-3



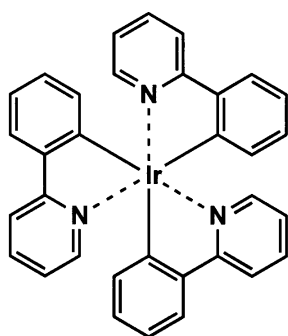
A-1



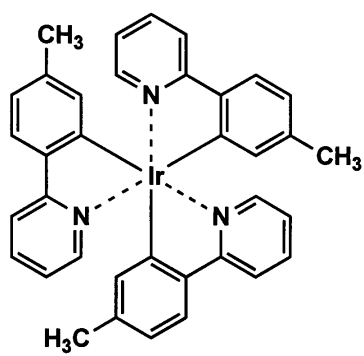
【0180】

【化 3 1】

Ir-1

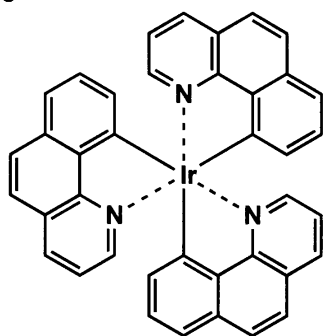


Ir-2

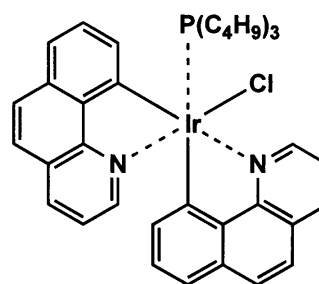


10

Ir-3

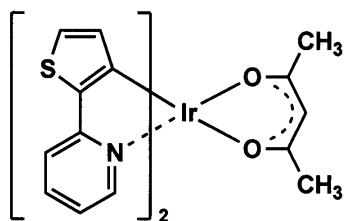


Ir-4

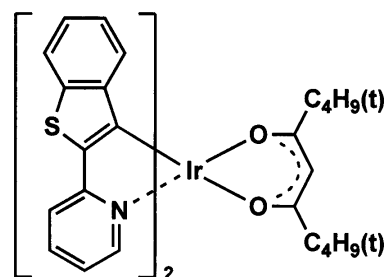


20

Ir-5



Ir-6

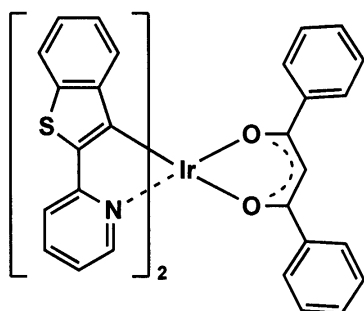


30

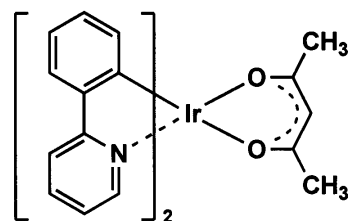
【 0 1 8 1】

【化 3 2】

Ir-7

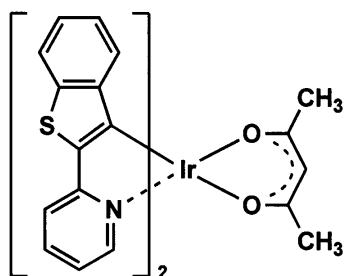


Ir-8

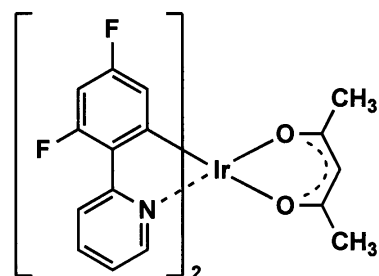


10

Ir-9

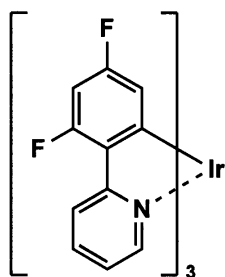


Ir-10

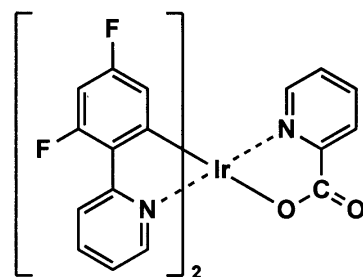


20

Ir-11

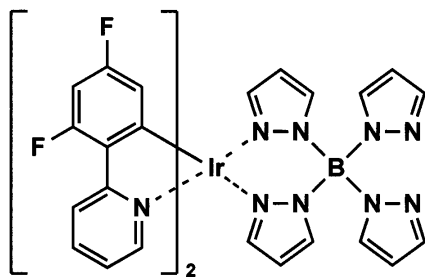


Ir-12

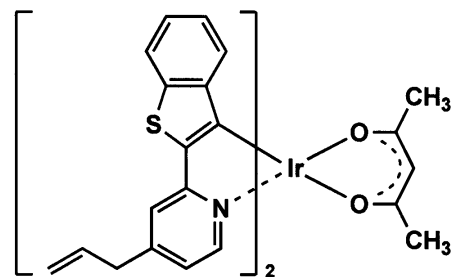


30

Ir-13



Ir-14

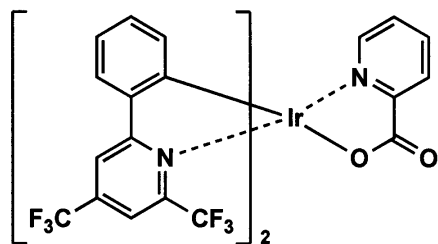


40

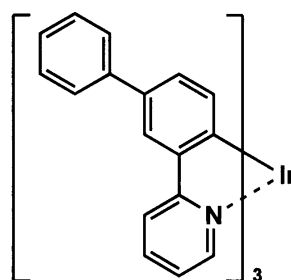
【0 1 8 2】

【化 3 3】

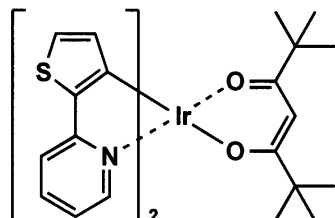
Ir-15



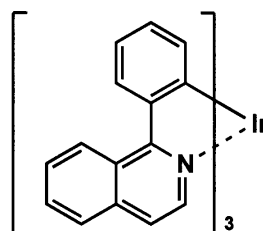
Ir-16



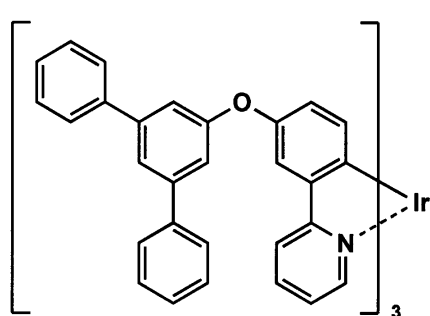
Ir-17



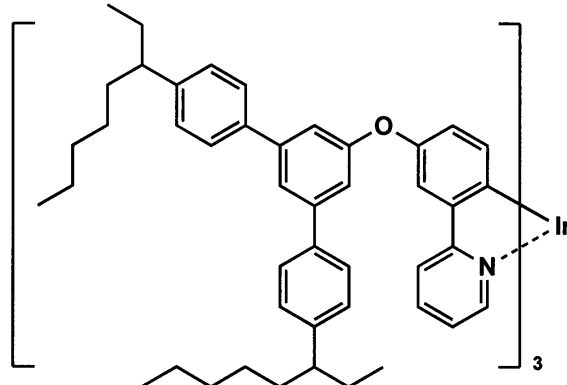
Ir-18



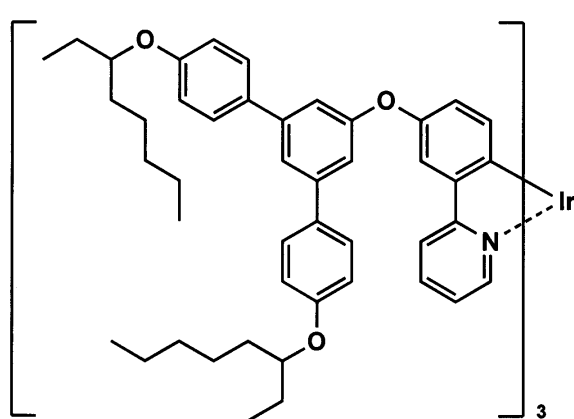
Ir-19



Ir-20



Ir-21



【 0 1 8 3】

10

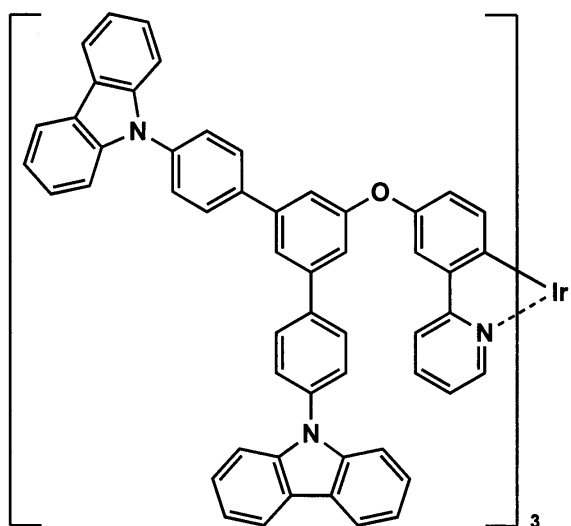
20

30

40

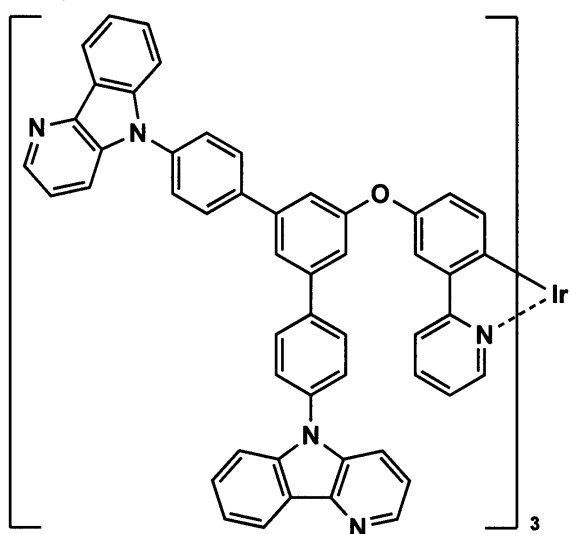
【化 3 4】

Ir-22



10

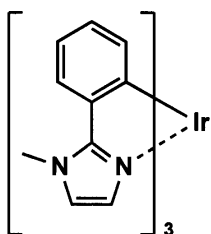
Ir-23



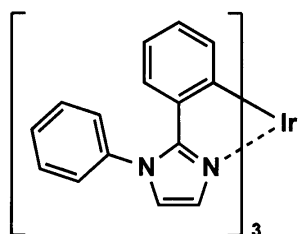
20

30

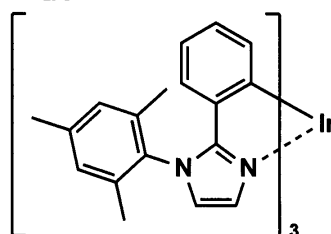
Ir-24



Ir-25



Ir-26

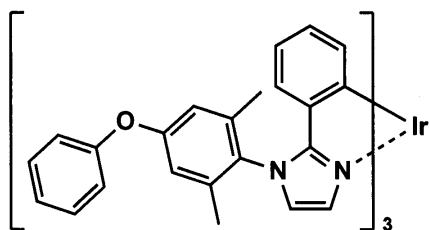


40

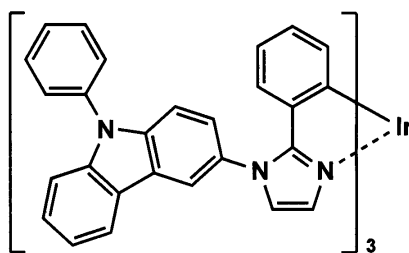
【 0 1 8 4】

【化 3 5】

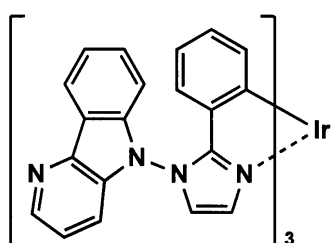
Ir-27



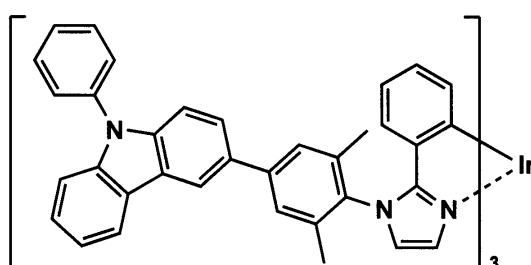
Ir-28



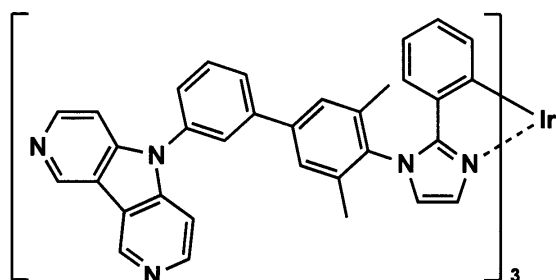
Ir-29



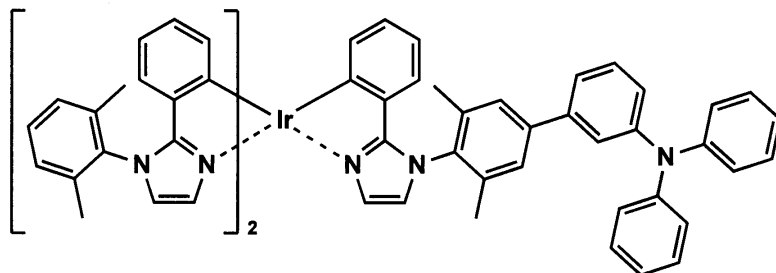
Ir-30



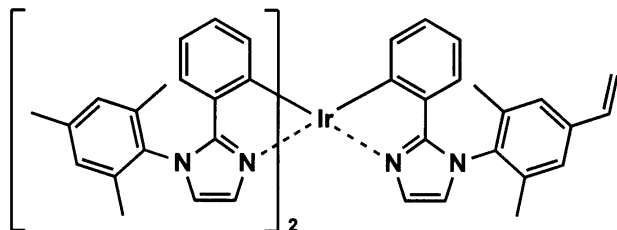
Ir-31



Ir-32



Ir-33



【 0 1 8 5 】

10

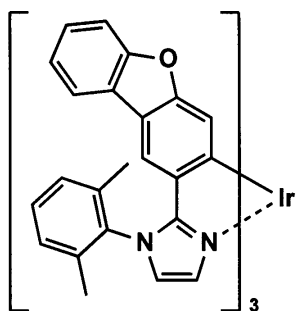
20

30

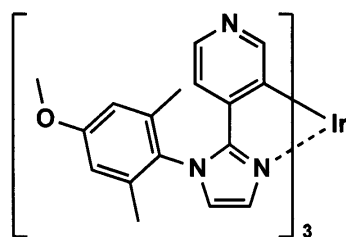
40

【化 3 6】

Ir-34

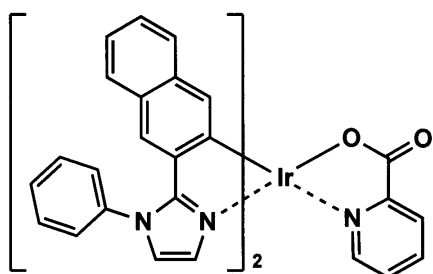


Ir-35

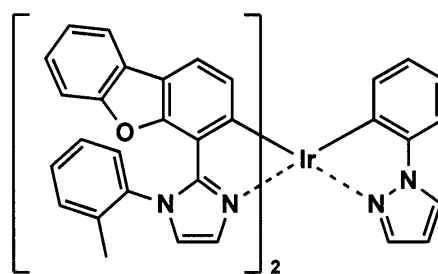


10

Ir-36

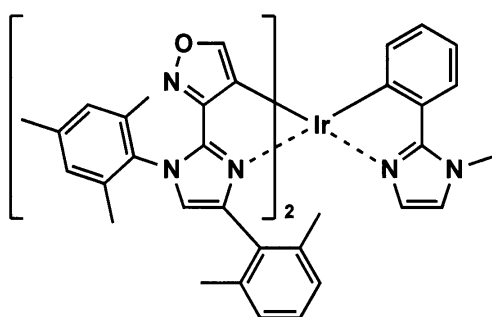


Ir-37

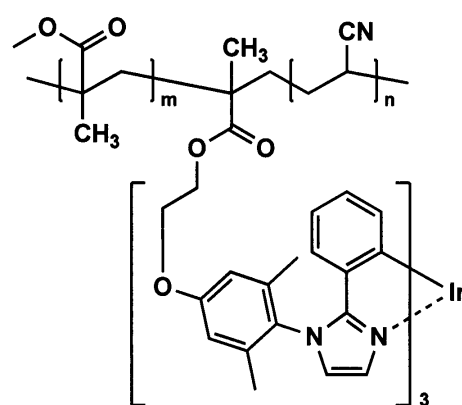


20

Ir-38



Ir-39

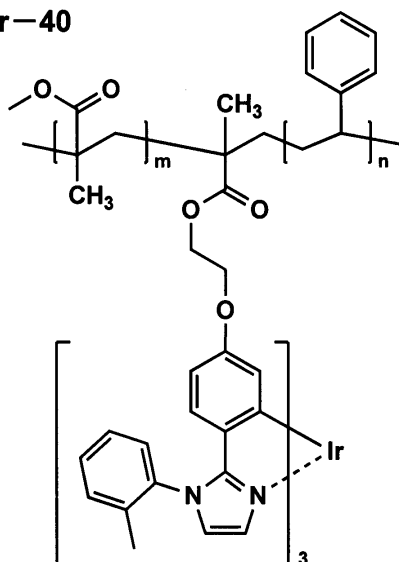


30

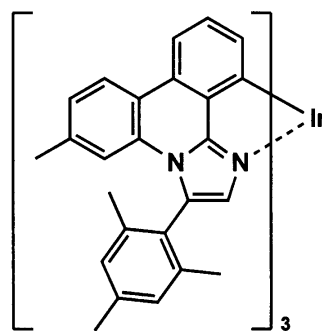
【 0 1 8 6 】

【化 3 7】

Ir-40

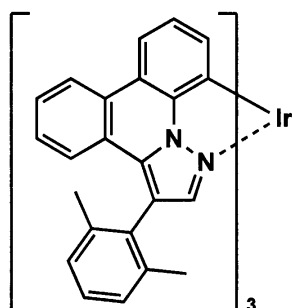


Ir-41

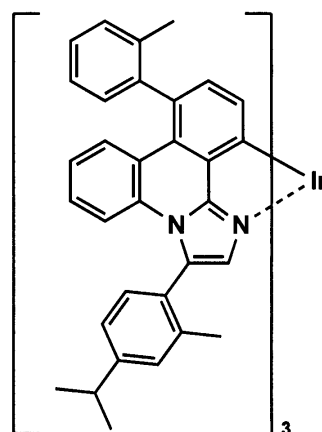


10

Ir-42

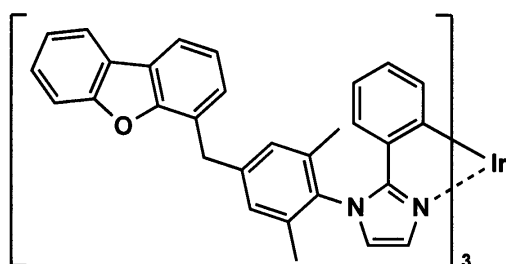


Ir-43

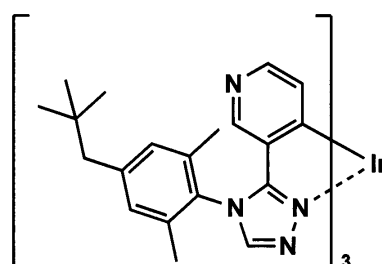


20

Ir-44



Ir-45



30

【0187】

上記のリン光発光性化合物（リン光発光性金属錯体等ともいう。）は、たとえば、Organic Letter誌, vol 3, No. 16, 2579~2581頁（2001）、Inorganic Chemistry, 第30巻, 第8号, 1685~1687頁（1991年）、J. Am. Chem. Soc., 123巻, 4304頁（2001年）、Inorganic Chemistry, 第40巻, 第7号, 1704~1711頁（2001年）、Inorganic Chemistry, 第41巻, 第12号, 3055~3066頁（2002年）、New Journal of Chemistry, 第26巻, 1171頁（2002年）、European Journal of Organic Chemistry, 第4巻, 695~709頁（2004年）、さらに、これらの文献中に記載の参考文献等の方法を適用することにより合成できる。

40

50

【0188】

(2) 蛍光性化合物

蛍光性化合物としては、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、ポリチオフェン系色素、または希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

【0189】

[注入層：正孔注入層、電子注入層]

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発光層3cの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」（123～166頁）に詳細に記載されており、正孔注入層3aと電子注入層3eとがある。

10

【0190】

注入層は、必要に応じて設けることができる。正孔注入層3aであれば、アノードと発光層3cまたは正孔輸送層3bとの間、電子注入層3eであればカソードと発光層3cまたは電子輸送層3dとの間に存在させてもよい。

【0191】

正孔注入層3a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層、酸化バナジウムに代表される酸化物層、アモルファスカーボン層、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層等が挙げられる。

20

【0192】

電子注入層3e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層、フッ化カリウムに代表されるアルカリ金属ハライド層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物層、酸化モリブデンに代表される酸化物層等が挙げられる。電子注入層3e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1nm～10μmの範囲内が好ましい。

【0193】

[正孔輸送層]

正孔輸送層3b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3a、電子阻止層も正孔輸送層3bに含まれる。正孔輸送層3bは、単層または複数層設けることができる。

30

【0194】

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、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。たとえば、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、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、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、また、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。

40

【0195】

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、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物およ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。

【0196】

芳香族第3級アミン化合物およ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（

50

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ゼン、N-フェニルカルバゾール、さらには、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、たとえば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]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。

10

【0197】

さらに、これらの材料を高分子鎖に導入した、また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。

20

【0198】

また、特開平11-251067号公報、J. Huang et. al., 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。

【0199】

正孔輸送層3bは、上記正孔輸送材料を、たとえば、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3b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の範囲内である。この正孔輸送層3bは、上記材料の1種または2種以上からなる1層構造であってもよい。

30

【0200】

また、正孔輸送層3bの材料に不純物をドーピングして*p*性を高くすることもできる。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、J. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。

【0201】

このように、正孔輸送層3bの*p*性を高くすると、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。

40

【0202】**[電子輸送層]**

電子輸送層3d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3e、正孔阻止層も電子輸送層3dに含まれる。電子輸送層3dは、単層構造または複数層の積層構造として設けることができる。

【0203】

単層構造の電子輸送層3dおよび積層構造の電子輸送層3dにおいて、発光層3cに隣接する層部分を構成する電子輸送材料(正孔阻止材料を兼ねる)としては、カソードより注入された電子を発光層3cに伝達する機能を有していればよい。このような材料としては、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。たとえば、ニ

50

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、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、アントロン誘導体およびオキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、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、電子輸送層 3 d の材料として用いることができる。さらに、これらの材料を高分子鎖に導入した、また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。

【0204】

また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、たとえば、トリス(8-キノリノール)アルミニウム (Alq_3)、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、ビス(8-キノリノール)亜鉛 (Znq) 等、およびこれらの金属錯体の中心金属が In 、 Mg 、 Cu 、 Ca 、 Sn 、 Ga または Pb に置き替わった金属錯体も、電子輸送層 3 d の材料として用いることができる。

【0205】

その他、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニン、また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、電子輸送層 3 d の材料として好ましく用いることができる。また、発光層 3 c の材料としても用いられるジスチルルピラジン誘導体も電子輸送層 3 d の材料として用いることができるし、正孔注入層 3 a、正孔輸送層 3 b と同様に、 n 型-Si、 n 型-SiC 等の無機半導体も電子輸送層 3 d の材料として用いることができる。

【0206】

電子輸送層 3 d は、上記材料を、たとえば、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。電子輸送層 3 d の層厚については特に制限はないが、通常は $5\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{m}$ 程度、好ましくは $5 \sim 200\text{ nm}$ の範囲内である。電子輸送層 3 d は、上記材料の 1 種または 2 種以上からなる 1 層構造であってもよい。

【0207】

また、電子輸送層 3 d に不純物をドーピングし、 n 性を高くすることもできる。その例としては、特開平 4-297076 号公報、同 10-270172 号公報、特開 2000-196140 号公報、同 2001-102175 号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004) 等に記載されたものが挙げられる。さらに、電子輸送層 3 d には、カリウムやカリウム化合物等を含有させることが好ましい。カリウム化合物としては、たとえば、フッ化カリウム等を用いることができる。このように、電子輸送層 3 d の n 性を高くすると、より低消費電力の素子を作製することができる。

【0208】

また、電子輸送層 3 d の材料(電子輸送性化合物)として、上述した中間層 1 a を構成する材料と同様のものを用いてもよい。これは、電子注入層 3 e を兼ねた電子輸送層 3 d であっても同様であり、上述した中間層 1 a を構成する材料と同様のものを用いてもよい。

【0209】

[阻止層：正孔阻止層、電子阻止層]

阻止層は、上記した発光機能層 3 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。たとえば、特開平 11-204258 号公報、同 11-204359 号公報、および「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。

【0210】

正孔阻止層とは、広い意味では、電子輸送層 3 d の機能を有する。正孔阻止層は、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

10

20

30

40

50

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。また、上記の電子輸送層 3 d の構成を必要に応じて、正孔阻止層として用いることができる。正孔阻止層は、発光層 3 c に隣接して設けられていることが好ましい。

【0211】

一方、電子阻止層とは、広い意味では、正孔輸送層 3 b の機能を有する。電子阻止層は、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。また、上記の正孔輸送層 3 b 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。正孔阻止層の層厚としては、好ましくは 3 ~ 100 nm の範囲内であり、さらに好ましくは 5 ~ 30 nm の範囲内である。

10

【0212】

[補助電極]

補助電極 15 は、透明電極 1 の抵抗を下げる目的で設けられるものであって、透明電極 1 の導電性層 1 b に接して設けられる。補助電極 15 を形成する材料としては、金、白金、銀、銅、アルミニウム等の抵抗が低い金属が好ましい。これらの金属は光透過性が低いため、光取り出し面 13 a からの発光光 h の取り出しの影響のない範囲でパターン形成される。このような補助電極 15 の作製方法としては、蒸着法、スパッタリング法、印刷法、インクジェット法、エアロゾルジェット法等が挙げられる。補助電極 15 の線幅は、光を取り出す開口率の観点から、50 μm 以下であることが好ましく、補助電極 15 の厚さは、導電性の観点から、1 μm 以上であることが好ましい。

20

【0213】

[封止材]

封止材 17 は、有機 EL 素子 100 を覆うものであり、板状（フィルム状）の封止部材であって接着剤 19 によって透明基板 13 側に固定されるものであってもよく、封止膜であってよい。このような封止材 17 は、有機 EL 素子 100 における透明電極 1 および対向電極 5 a の端子部分を露出させる状態で、少なくとも発光機能層 3 を覆う状態で設けられている。また、封止材 17 に電極を設け、有機 EL 素子 100 の透明電極 1 および対向電極 5 a の端子部分と、この電極とを導通させるように構成されていてもよい。

【0214】

板状（フィルム状）の封止材 17 としては、具体的には、ガラス基板、ポリマー基板、金属基板等が挙げられ、これらの基板材料をさらに薄型のフィルム状にして用いてもよい。ガラス基板としては、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、石英等を挙げることができる。また、ポリマー基板としては、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、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属基板としては、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、モリブデン、シリコン、ゲルマニウムおよびタンタルからなる群から選ばれる 1 種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。

30

【0215】

中でも、素子を薄膜化できるということから、封止材としてポリマー基板や金属基板を薄型のフィルム状にしたものを好ましく使用することができる。

40

【0216】

さらには、フィルム状としたポリマー基板は、JIS K 7126-1987 に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 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 ($25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 (90 ± 2) % RH) が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のものであることが好ましい。

【0217】

また、以上のような基板材料は、凹板状に加工して封止材 17 として用いてもよい。この場合、上述した基板材料に対してサンドブラスト加工、化学エッチング加工等の加工が

50

施され、凹状が形成される。

【0218】

また、このような板状の封止材17を透明基板13側に固定するための接着剤19は、封止材17と透明基板13との間に挟持された有機EL素子100を封止するためのシール剤として用いられる。このような接着剤19は、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および熱硬化型接着剤、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、エポキシ系等の熱および化学硬化型（二液混合）、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、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。

10

【0219】

なお、有機EL素子100を構成する有機材料は、熱処理により劣化する場合がある。このため、接着剤19は、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、接着剤19中に乾燥剤を分散させておいてもよい。

【0220】

封止材17と透明基板13との接着部分への接着剤19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。

【0221】

また、板状の封止材17と透明基板13と接着剤19との間に隙間が形成される場合、この隙間には、気相および液相では、窒素、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。

20

【0222】

吸湿性化合物としては、たとえば、金属酸化物（たとえば、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（たとえば、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（たとえば、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、フッ化セシウム、フッ化タンタル、臭化セリウム、臭化マグネシウム、ヨウ化バリウム、ヨウ化マグネシウム等）、過塩素酸類（たとえば、過塩素酸バリウム、過塩素酸マグネシウム等）等が挙げられ、硫酸塩、金属ハロゲン化物および過塩素酸類においては無水塩が好適に用いられる。

30

【0223】

一方、封止材17として封止膜を用いる場合、有機EL素子100における発光機能層3を完全に覆い、かつ有機EL素子100における透明電極1および対向電極5aの端子部分を露出させる状態で、透明基板13上に封止膜が設けられる。

【0224】

このような封止膜は、無機材料や有機材料を用いて構成される。特に、水分や酸素等、有機EL素子100における発光機能層3の劣化をもたらす物質の浸入を抑制する機能を有する材料で構成されることとする。このような材料として、たとえば、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、窒化ケイ素等の無機材料が用いられる。さらに、封止膜の脆弱性を改良するために、これら無機材料からなる膜と共に、有機材料からなる膜を用いて積層構造としてもよい。

40

【0225】

これらの膜の作製方法については、特に限定はなく、たとえば、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、コーティング法等を用いることができる。

【0226】

[保護膜、保護板]

透明基板13とともに、有機EL素子100および封止材17を挟むようにして保護膜

50

もしくは保護板を設けてもよい。この保護膜もしくは保護板は、有機EL素子100を機械的に保護するためのものであり、特に封止材17が封止膜である場合には、有機EL素子100に対する機械的な保護が十分ではないため、このような保護膜もしくは保護板を設けることが好ましい。

【0227】

以上のような保護膜もしくは保護板としては、ガラス板、ポリマー板、これよりも薄型のポリマーフィルム、金属板、これよりも薄型の金属フィルム、またはポリマー材料膜や金属材料膜が適用される。このうち、特に、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。

【0228】

<有機EL素子の製造方法>

ここでは一例として、図8に示す有機EL素子100の製造方法について説明する。

【0229】

まず、透明基板13上に、双極子モーメントが $5.0 \sim 25.0$ デバイの範囲内である有機化合物からなる中間層1aを、 $1 \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10 \sim 100 \text{ nm}$ の層厚になるように蒸着法等の適宜の方法により形成する。次に、銀（または銀を含有する合金）からなる導電性層1bを $5 \sim 20 \text{ nm}$ の範囲内、好ましくは $5 \sim 12 \text{ nm}$ の範囲内の層厚になるように蒸着法等の適宜の方法により中間層1a上に形成し、アノードとなる透明電極1を作製する。

【0230】

次に、この上に正孔注入層3a、正孔輸送層3b、発光層3c、電子輸送層3d、電子注入層3eの順に成膜し、発光機能層3を形成する。これらの各層の成膜は、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、印刷法等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法またはスピコート法が特に好ましい。さらに、層ごとに異なる成膜法を適用してもよい。これらの各層の成膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は使用する化合物の種類等により異なるが、一般にポート加熱温度 $50 \sim 450^\circ\text{C}$ 、真空度 $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ 、蒸着速度 $0.01 \sim 50 \text{ nm/秒}$ 、基板温度 $-50 \sim 300^\circ\text{C}$ 、層厚 $0.1 \sim 5 \mu\text{m}$ の範囲内で、各条件を適宜選択することが望ましい。

【0231】

以上のようにして発光機能層3を形成した後、この上部にカソードとなる対向電極5aを、蒸着法やスパッタ法等の適宜の成膜法によって形成する。この際、対向電極5aは、発光機能層3によって透明電極1に対して絶縁状態を保ちつつ、発光機能層3の上方から透明基板13の周縁に端子部分を引き出した形状にパターン形成する。これにより、有機EL素子100が得られる。その後、有機EL素子100における透明電極1および対向電極5aの端子部分を露出させた状態で、少なくとも発光機能層3を覆う封止材17を設ける。

【0232】

以上により、透明基板13上に所望の有機EL素子が得られる。このような有機EL素子100の作製においては、1回の真空引きで一貫して発光機能層3から対向電極5aまで作製するのが好ましいが、途中で真空雰囲気から透明基板13を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等の配慮が必要となる。

【0233】

このようにして得られた有機EL素子100に直流電圧を印加する場合には、アノードである透明電極1を+の極性とし、カソードである対向電極5aを-の極性として、電圧 $2 \sim 40 \text{ V}$ 程度を印加すると発光が観測できる。また、交流電圧を印加してもよい。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

【0234】

<有機EL素子の効果>

以上説明した有機EL素子100は、本発明の導電性と光透過性とを兼ね備えた透明電極1をアノードとして用い、この上部に発光機能層3とカソードとなる対向電極5aとを設けた構成である。このため、透明電極1と対向電極5aとの間に十分な電圧を印加して有機EL素子100での高輝度発光を実現しつつ、透明電極1側からの発光光hの取り出し効率が向上することによる高輝度化を図ることが可能である。さらに、所定輝度を得るための駆動電圧の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

【0235】

≪4. 有機EL素子の第2例≫

<有機EL素子の構成>

図9は、本発明の電子デバイスの一例として、上述した透明電極1を用いた有機EL素子の第2例を示す概略断面図である。図9に示す第2例の有機EL素子200が、図8に示した第1例の有機EL素子100と異なるところは、透明電極1をカソードとして用いるところにある。以下、第1例と同様の構成要素についての重複する詳細な説明は省略し、第2例の有機EL素子200の特徴的な構成を説明する。

10

【0236】

図9に示すとおり、有機EL素子200は、透明基板13上に設けられており、第1例と同様に、透明基板13上の透明電極1として先に説明した本発明の透明電極1を用いている。このため有機EL素子200は、少なくとも透明基板13側から発光光hを取り出せるように構成されている。ただし、この透明電極1は、カソード（陰極）として用いられる。このため、対向電極5bは、アノードとして用いられることになる。

20

【0237】

このように構成される有機EL素子200の層構造は以下に説明する例に限定されることはなく、一般的な層構造であってもよいことは、第1例と同様である。

【0238】

本第2例の場合の一例としては、カソードとして機能する透明電極1の上部に、電子注入層3e／電子輸送層3d／発光層3c／正孔輸送層3b／正孔注入層3aをこの順に積層した構成が例示される。ただし、このうち少なくとも有機材料で構成された発光層3cを有することが必須である。

【0239】

なお、発光機能層3は、これらの層の他にも、第1例で説明したのと同様に、必要に応じたさまざまな構成が採用される。このような構成において、透明電極1と対向電極5bとで発光機能層3が挟持された部分のみが、有機EL素子200における発光領域となることも第1例と同様である。

30

【0240】

また、以上のような層構成においては、透明電極1の低抵抗化を図ることを目的として透明電極1の導電性層1bに接して補助電極15が設けられていてもよいことも、第1例と同様である。

【0241】

ここで、アノードとして用いられる対向電極5bは、金属、合金、有機もしくは無機の導電性化合物、またはこれらの混合物等から構成されている。具体的には、金(Au)等の金属、ヨウ化銅(CuI)、ITO、ZnO、TiO₂、SnO₂等の酸化物半導体等が挙げられる。

40

【0242】

以上のように構成されている対向電極5bは、これらの導電性材料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、対向電極5bとしてのシート抵抗値は、数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常5nm～5μm、好ましくは5～200nmの範囲内で選ばれる。

【0243】

なお、この有機EL素子200が、対向電極5b側からも発光光hを取り出せるように構成されている場合、対向電極5bを構成する材料としては、上述した導電性材料のうち

50

光透過性の良好な導電性材料が選択されて用いられる。

【0244】

以上のような構成の有機EL素子200は、発光機能層3の劣化を防止することを目的として、第1例と同様に封止材17で封止されている。

【0245】

以上説明した有機EL素子200を構成する主要各層のうち、アノードとして用いられる対向電極5b以外の構成要素の詳細な構成、および有機EL素子200の製造方法は、第1例と同様である。このため詳細な説明は省略する。

【0246】

<有機EL素子の効果>

10

以上説明した有機EL素子200は、本発明の導電性と光透過性とを兼ね備えた透明電極1をカソードとして用い、この上部に発光機能層3とアノードとなる対向電極5bとを設けた構成である。このため、第1例と同様に、透明電極1と対向電極5bとの間に十分な電圧を印加して有機EL素子200での高輝度発光を実現しつつ、透明電極1側からの発光光hの取り出し効率が向上することによる高輝度化を図ることが可能である。さらに、所定輝度を得るための駆動電圧の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

【0247】

<5. 有機EL素子の第3例>

<有機EL素子の構成>

図10は、本発明の電子デバイスの一例として、上述した透明電極1を用いた有機EL素子の第3例を示す概略断面図である。図10に示す第3例の有機EL素子300が、図8に示した第1例の有機EL素子100と異なるところは、基板131側に対向電極5cを設け、この上部に発光機能層3と透明電極1とをこの順に積層したところにある。以下、第1例と同様の構成要素についての重複する詳細な説明は省略し、第3例の有機EL素子300の特徴的な構成を説明する。

20

【0248】

図10に示す有機EL素子300は、基板131上に設けられており、基板131側から、アノードとなる対向電極5c、発光機能層3、およびカソードとなる透明電極1がこの順に積層されている。このうち、透明電極1として、先に説明した本発明の透明電極1を用いている。このため有機EL素子300は、少なくとも基板131とは逆の透明電極1側から発光光hを取り出せるように構成されている。

30

【0249】

このように構成される有機EL素子300の層構造は、以下に説明する例に限定されることはなく、一般的な層構造であってもよいことは、第1例と同様である。

【0250】

本第3例の場合の一例としては、アノードとして機能する対向電極5cの上部に、正孔注入層3a／正孔輸送層3b／発光層3c／電子輸送層3dをこの順に積層した構成が例示される。ただし、このうち少なくとも有機材料を用いて構成された発光層3cを有することが必須である。また、電子輸送層3dは、電子注入層3eを兼ねたもので、電子注入性を有する電子輸送層3dとして設けられていることとする。

40

【0251】

特に、本第3例の有機EL素子300に特徴的な構成としては、電子注入性を有する電子輸送層3dが、透明電極1における中間層1aとして設けられているところにある。すなわち、本第3例においては、カソードとして用いられる透明電極1が、電子注入性を有する電子輸送層3dを兼ねる中間層1aと、その上部に設けられた導電性層1bとで構成されているものである。

【0252】

このような電子輸送層3dは、上述した透明電極1の中間層1aを構成する材料を用いて構成されている。

【0253】

50

なお、発光機能層 3 は、これらの層の他にも、第 1 例で説明したと同様に、必要に応じたさまざまな構成が採用されるが、透明電極 1 の中間層 1 a を兼ねる電子輸送層 3 d と、透明電極 1 の導電性層 1 b との間には、電子注入層や正孔阻止層が設けられることはない。以上のような構成において、透明電極 1 と対向電極 5 c とで発光機能層 3 が挟持された部分のみが、有機 EL 素子 3 0 0 における発光領域となることは、第 1 例と同様である。

【0254】

また、以上のような層構成においては、透明電極 1 の低抵抗化を図ることを目的とし、透明電極 1 の導電性層 1 b に接して補助電極 1 5 が設けられていてもよいことも、第 1 例と同様である。

【0255】

さらに、アノードとして用いられる対向電極 5 c は、金属、合金、有機もしくは無機の導電性化合物、またはこれらの混合物等から構成されている。具体的には、金 (Au) 等の金属、ヨウ化銅 (CuI)、ITO、ZnO、TiO₂、SnO₂ 等の酸化物半導体等が挙げられる。

【0256】

以上のように構成されている対向電極 5 c は、これらの導電性材料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、対向電極 5 c としてのシート抵抗値は、数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常 5 nm~5 μm、好ましくは 5~200 nm の範囲内で選ばれる。

【0257】

なお、この有機 EL 素子 3 0 0 が、対向電極 5 c 側からも発光光 h を取り出せるように構成されている場合、対向電極 5 c を構成する材料としては、上述した導電性材料のうち光透過性の良好な導電性材料が選択されて用いられる。また、この場合、基板 1 3 1 としては、第 1 例で説明した透明基板 1 3 と同様のものが用いられ、基板 1 3 1 の外側に向かう面が光取り出し面 1 3 1 a となる。

【0258】

<有機 EL 素子の効果>

以上説明した有機 EL 素子 3 0 0 は、発光機能層 3 の最上部を構成する電子注入性を有する電子輸送層 3 d を中間層 1 a とし、この上部に導電性層 1 b を設けることにより、中間層 1 a とこの上部の導電性層 1 b とからなる透明電極 1 をカソードとして設けた構成である。このため、第 1 例および第 2 例と同様に、透明電極 1 と対向電極 5 c との間に十分な電圧を印加して有機 EL 素子 3 0 0 での高輝度発光を実現しつつ、透明電極 1 側からの発光光 h の取り出し効率が向上することによる高輝度化を図ることが可能である。さらに、所定輝度を得るための駆動電圧の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。また、対向電極 5 c が光透過性を有する場合には、対向電極 5 c から発光光 h を取り出すことができる。

【0259】

なお、上述の第 3 例においては、透明電極 1 の中間層 1 a が電子注入性を有する電子輸送層 3 d を兼ねているものとして説明したが、本例はこれに限られるものではなく、中間層 1 a が電子注入性を有していない電子輸送層 3 d を兼ねているものであってもよいし、中間層 1 a が電子輸送層ではなく電子注入層を兼ねているものであってもよい。また、中間層 1 a が有機 EL 素子の発光機能に影響を及ぼさない程度の極薄膜として形成されているものとしてもよく、この場合には、中間層 1 a は電子輸送性および電子注入性を有していない。

【0260】

さらに、透明電極 1 の中間層 1 a が有機 EL 素子の発光機能に影響を及ぼさない程度の極薄膜として形成されている場合には、基板 1 3 1 側の対向電極 5 c をカソードとし、発光機能層 3 上の透明電極 1 をアノードとしてもよい。この場合、発光機能層 3 は、基板 1 3 1 上の対向電極 (カソード) 5 c 側から順に、たとえば、電子注入層 3 e / 電子輸送層 3 d / 発光層 3 c / 正孔輸送層 3 b / 正孔注入層 3 a が積層される。そして、この上部に

、極薄い中間層 1 a と導電性層 1 b との積層構造からなる透明電極 1 がアノードとして設けられる。

【0261】

《6. 有機EL素子の用途》

上述した各構成の有機EL素子は、上述したように面発光体であるため各種の発光光源として用いることができる。たとえば、家庭用照明や車内照明等の照明装置、時計や液晶用のバックライト、看板広告用照明、信号機の光源、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。特に、カラーフィルターと組み合わせた液晶表示装置のバックライト、照明用光源としての用途に有効に用いることができる。

10

【0262】

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。この場合、近年の照明装置およびディスプレイの大型化にともない、有機EL素子を設けた発光パネル同士を平面的に接合する、いわゆるタイリングによって発光面を大面積化してもよい。

【0263】

動画再生用の表示装置として使用する場合は、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。また、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を2種以上使用することにより、カラーまたはフルカラー表示装置を作製することが可能である。

20

【0264】

以下では、用途の一例として照明装置について説明し、次にタイリングによって発光面を大面積化した照明装置について説明する。

【0265】

《7. 照明装置－1》

照明装置は、上記有機EL素子を具備することができる。

【0266】

照明装置に用いる有機EL素子は、上述した構成の各有機EL素子に共振器構造を持たせた設計としてもよい。共振器構造を有するように構成された有機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。

30

【0267】

なお、本発明の有機EL素子に用いられる材料は、実質的に白色の発光を生じる有機EL素子（白色有機EL素子）に適用できる。たとえば、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、混色により白色発光を得ることもできる。複数の発光色の組み合わせとしては、赤色、緑色、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。

40

【0268】

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、複数のリン光または蛍光で発光する材料を複数組み合わせたもの、蛍光またはリン光で発光する発光材料と、発光材料から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、白色有機EL素子においては、発光ドーパントを複数組み合わせて混合したものでもよい。

【0269】

このような白色有機EL素子は、各色発光の有機EL素子をアレー状に個別に並列配置して白色発光を得る構成と異なり、有機EL素子自体が白色を発光する。このため、素子を構成するほとんどの層の成膜にマスクを必要とせず、一面に蒸着法、キャスト法、スピ

50

ンコート法、インクジェット法、印刷法等で成膜することができ、生産性も向上する。

【0270】

また、このような白色有機EL素子の発光層に用いる発光材料としては、特に制限はなく、たと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、上記した金属錯体や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て白色化すればよい。

【0271】

以上に説明した白色有機EL素子を用いれば、実質的に白色の発光を生じる照明装置を作製することが可能である。

【0272】

≪8. 照明装置－2≫

図11は、上記各構成の有機EL素子を複数用いて発光面を大面積化した照明装置の概略断面図である。

図11に示すとおり、照明装置21は、透明基板13上に有機EL素子100を備えた複数の発光パネル22を、支持基板23上に複数配列する（タイリングする）ことによって発光面を大面積化した構成である。支持基板23は、封止材17を兼ねるものであってもよく、この支持基板23と、発光パネル22の透明基板13との間に有機EL素子100を挟持する状態で各発光パネル22をタイリングする。支持基板23と透明基板13の間には接着剤19を充填し、これによって有機EL素子100を封止してもよい。なお、発光パネル22の周囲には、アノードである透明電極1およびカソードである対向電極5aの端部を露出させておく。ただし、図11においては対向電極5aの露出部分のみを図示した。

なお、図11では、有機EL素子100を構成する発光機能層3として、透明電極1上に、正孔注入層3a／正孔輸送層3b／発光層3c／電子輸送層3d／電子注入層3eを順次積層した構成を一例として示している。

【0273】

このような構成の照明装置21では、各発光パネル22の中央が発光領域Aとなり、発光パネル22間には非発光領域Bが発生する。このため、非発光領域Bからの光取り出し量を増加させるための光取り出し部材を、光取り出し面13aの非発光領域Bに設けてもよい。光取り出し部材としては、集光シートや光拡散シートを用いることができる。

【実施例1】

【0274】

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。

【0275】

≪透明電極の作製≫

以下に説明するように、透明電極1～64を、導電性領域の面積が5cm×5cmとなるように作製した。透明電極1～4は、導電性層のみからなる単層構造の透明電極として作製し、透明電極5～64は、中間層と導電性層との積層構造の透明電極として作製した。

【0276】

(1) 透明電極1の作製

まず、透明な無アルカリガラス製の基材を、市販の真空蒸着装置の基材ホルダーに固定し、真空蒸着装置の真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに銀（Ag）を充填し、当該真空槽内に取り付けた。次に、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、抵抗加熱ボートを通電して加熱し、蒸着速度0.1～0.2 nm/秒の範囲内で、基材上に層厚5 nmの銀からなる導電性層を成膜し、単層構造の透明電極1を作製した。

【0277】

(2) 透明電極2～4の作製

透明電極 1 の作製において、導電性層の層厚をそれぞれ 8 nm、10 nm、15 nm に変更した以外は同様にして、透明電極 2 ～ 4 を作製した。

【0278】

(3) 透明電極 5 の作製

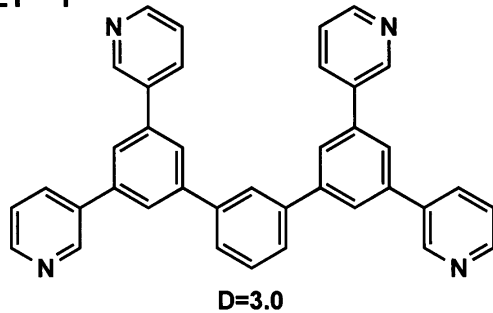
透明な無アルカリガラス製の基材を市販の真空蒸着装置の基材ホルダーに固定し、下記構造式に示す ET-1 をタンタル製抵抗加熱ボートに充填し、これらの基板ホルダーと加熱ボートとを真空蒸着装置の第 1 真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに銀を充填し、第 2 真空槽内に取り付けた。

【0279】

【化 38】

10

ET-1



20

【0280】

この状態で、まず、第 1 真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、ET-1 の入った加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 ～ 0.2 nm/秒の範囲内で、基材上に層厚 20 nm の ET-1 からなる中間層を設けた。

【0281】

次に、中間層まで成膜した基材を真空のまま第 2 真空槽に移し、第 2 真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、銀の入った加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 ～ 0.2 nm/秒の範囲内で、層厚 8 nm の銀からなる導電性層を形成し、中間層と導電性層との積層構造からなる透明電極 5 を作製した。

30

【0282】

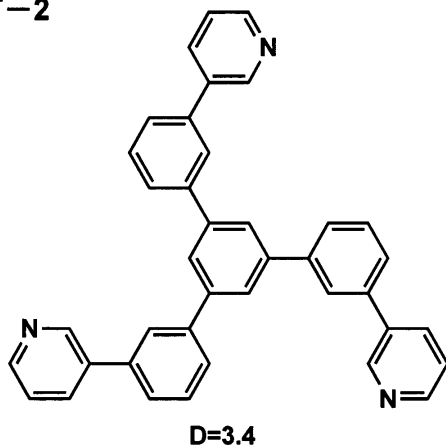
(4) 透明電極 6 ～ 8 の作製

透明電極 5 の作製において、中間層の構成材料をそれぞれ下記構造式に示す ET-2 ～ ET-4 に変更した以外は同様にして、透明電極 6 ～ 8 を作製した。

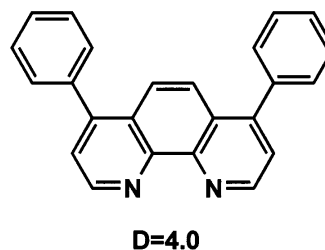
【0283】

【化 3 9】

ET-2

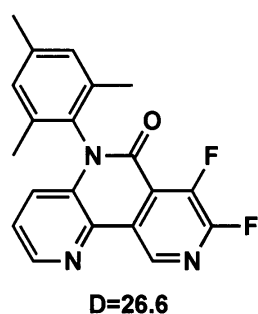


ET-3



10

ET-4



20

【0 2 8 4】

(5) 透明電極 9 の作製

透明な無アルカリガラス製の基材を市販の真空蒸着装置の基材ホルダーに固定し、本発明の例示化合物 (1) をタンタル製抵抗加熱ボートに充填し、これらの基板ホルダーと加熱ボートとを真空蒸着装置の第 1 真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに銀を充填し、第 2 真空槽内に取り付けた。

30

【0 2 8 5】

この状態で、まず、第 1 真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、例示化合物 (1) の入った加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \sim 0.2$ nm/秒の範囲内で、基材上に層厚 20 nm の例示化合物 (1) からなる中間層を設けた。

【0 2 8 6】

次に、中間層まで成膜した基材を真空のまま第 2 真空槽に移し、第 2 真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、銀の入った加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \sim 0.2$ nm/秒の範囲内で、層厚 5 nm の銀からなる導電性層を形成し、中間層と導電性層との積層構造からなる透明電極 9 を作製した。

【0 2 8 7】

(6) 透明電極 10 ~ 12 の作製

透明電極 9 の作製において、導電性層の層厚をそれぞれ 8 nm、10 nm、20 nm に変更した以外は同様にして、透明電極 10 ~ 12 を作製した。

40

【0 2 8 8】

(7) 透明電極 13 ~ 60 の作製

透明電極 10 の作製において、中間層の構成材料を表 1 および 2 に記載の例示化合物に変更した以外は同様にして、透明電極 13 ~ 60 を作製した。

【0 2 8 9】

(8) 透明電極 61 ~ 64 の作製

透明電極 24、48、59 および 60 の作製において、基材を無アルカリガラスから P

50

E T (ポリエチレンテレフタレート) フィルムに変更した以外は同様にして、透明電極 61～64 を作製した。

【0290】

《透明電極の評価》

作製した透明電極 1～64 について、下記の方法に従い、光透過率、シート抵抗値および耐久性（光透過率の変化量）の測定を行った。

【0291】

(1) 光透過率の測定

作製した各透明電極について、分光光度計（日立製作所製 U-3300）を用い、各透明電極の基材をリファレンスとして、波長 550 nm における光透過率（%）を測定した。

10

測定結果を表 1 および 2 に示す。

【0292】

(2) シート抵抗値の測定

作製した各透明電極について、抵抗率計（三菱化学社製 MCP-T610）を用い、4 端子 4 探針法定電流印加方式でシート抵抗値（ $\Omega/\square$ ）を測定した。

測定結果を表 1 および 2 に示す。

【0293】

(3) 高温保存下における光透過率の変化量の測定

作製した各透明電極について、高温環境（温度 80℃）下で、150 時間保存し、光透過率を測定して、その変化量を算出した。

20

測定結果を表 1 および 2 に示す。

なお、光透過率の変化量は、透明電極 7 の光透過率の変化量を 100 とする相対値で示している。

【0294】

【表 1】

透明電極 No.	基材	透明電極の構成					評価結果		備考
		中間層		導電性層		シート抵抗値 ($\Omega/\square$)	光透過率 (%)		
		材料	双極子モーメント(D)	層厚 (nm)	材料			層厚 (nm)	
1	無アルカリガラス	—	—	—	Ag	5	30	測定不可	比較例
2	無アルカリガラス	—	—	—	Ag	8	45	512.0	比較例
3	無アルカリガラス	—	—	—	Ag	10	38	41.0	比較例
4	無アルカリガラス	—	—	—	Ag	15	22	10.0	比較例
5	無アルカリガラス	ET-1	3.0	20	Ag	8	41	45.0	比較例
6	無アルカリガラス	ET-2	3.4	20	Ag	8	45	35.0	比較例
7	無アルカリガラス	ET-3	4.0	20	Ag	8	43	25.0	比較例
8	無アルカリガラス	ET-4	26.6	20	Ag	8	54	18.0	比較例
9	無アルカリガラス	例示化合物(1)	5.1	20	Ag	5	76	10.8	本発明
10	無アルカリガラス	例示化合物(1)	5.1	20	Ag	8	71	7.1	本発明
11	無アルカリガラス	例示化合物(1)	5.1	20	Ag	10	68	7.7	本発明
12	無アルカリガラス	例示化合物(1)	5.1	20	Ag	20	65	7.6	本発明
13	無アルカリガラス	例示化合物(2)	7.5	20	Ag	8	59	7.5	本発明
14	無アルカリガラス	例示化合物(3)	6.9	20	Ag	8	60	7.4	本発明
15	無アルカリガラス	例示化合物(4)	5.0	20	Ag	8	75	5.6	本発明
16	無アルカリガラス	例示化合物(5)	6.1	20	Ag	8	73	6.9	本発明
17	無アルカリガラス	例示化合物(6)	5.7	20	Ag	8	72	6.8	本発明
18	無アルカリガラス	例示化合物(7)	7.0	20	Ag	8	78	5.5	本発明
19	無アルカリガラス	例示化合物(8)	8.9	20	Ag	8	76	5.8	本発明
20	無アルカリガラス	例示化合物(9)	6.0	20	Ag	8	78	5.6	本発明
21	無アルカリガラス	例示化合物(10)	5.0	20	Ag	8	77	5.8	本発明
22	無アルカリガラス	例示化合物(11)	5.9	20	Ag	8	83	3.9	本発明
23	無アルカリガラス	例示化合物(12)	6.1	20	Ag	8	77	5.8	本発明
24	無アルカリガラス	例示化合物(13)	8.3	20	Ag	8	83	3.9	本発明
25	無アルカリガラス	例示化合物(14)	7.7	20	Ag	8	77	5.7	本発明
26	無アルカリガラス	例示化合物(15)	5.0	20	Ag	8	77	5.6	本発明
27	無アルカリガラス	例示化合物(16)	7.1	20	Ag	8	77	5.8	本発明
28	無アルカリガラス	例示化合物(17)	7.7	20	Ag	8	77	5.6	本発明
29	無アルカリガラス	例示化合物(18)	5.5	20	Ag	8	75	5.7	本発明
30	無アルカリガラス	例示化合物(19)	5.0	20	Ag	8	76	5.6	本発明
31	無アルカリガラス	例示化合物(20)	6.4	20	Ag	8	76	5.7	本発明
32	無アルカリガラス	例示化合物(21)	8.9	20	Ag	8	77	5.7	本発明

【 0 2 9 5 】

10

20

30

40

【表 2】

透明電極 No.	基材	透明電極の構成					評価結果			備考
		中間層		導電性層		光透過率 (%)	シート抵抗値 (Ω/□)	透過率 変化量		
		材料	双極子モーメント(D)	層厚(nm)	材料				層厚(nm)	
33	無アルカリガラス	例示化合物(22)	8.8	20	Ag	8	75	5.6	37	本発明
34	無アルカリガラス	例示化合物(23)	7.3	20	Ag	8	77	5.6	36	本発明
35	無アルカリガラス	例示化合物(24)	6.3	20	Ag	8	77	5.7	36	本発明
36	無アルカリガラス	例示化合物(25)	8.1	20	Ag	8	78	5.8	37	本発明
37	無アルカリガラス	例示化合物(26)	8.8	20	Ag	8	77	5.6	39	本発明
38	無アルカリガラス	例示化合物(27)	9.9	20	Ag	8	83	3.9	17	本発明
39	無アルカリガラス	例示化合物(28)	9.0	20	Ag	8	77	5.6	37	本発明
40	無アルカリガラス	例示化合物(29)	12.5	20	Ag	8	82	4.2	20	本発明
41	無アルカリガラス	例示化合物(30)	9.9	20	Ag	8	83	4.1	22	本発明
42	無アルカリガラス	例示化合物(31)	10.1	20	Ag	8	84	4.0	13	本発明
43	無アルカリガラス	例示化合物(32)	9.5	20	Ag	8	82	4.1	15	本発明
44	無アルカリガラス	例示化合物(33)	9.5	20	Ag	8	81	4.1	11	本発明
45	無アルカリガラス	例示化合物(34)	9.5	20	Ag	8	83	4.1	19	本発明
46	無アルカリガラス	例示化合物(35)	11.4	20	Ag	8	81	4.0	12	本発明
47	無アルカリガラス	例示化合物(36)	12.1	20	Ag	8	83	4.1	21	本発明
48	無アルカリガラス	例示化合物(37)	9.5	20	Ag	8	82	4.2	22	本発明
49	無アルカリガラス	例示化合物(38)	12.9	20	Ag	8	82	4.0	13	本発明
50	無アルカリガラス	例示化合物(39)	11.7	20	Ag	8	83	4.1	13	本発明
51	無アルカリガラス	例示化合物(40)	10.5	20	Ag	8	77	5.6	38	本発明
52	無アルカリガラス	例示化合物(41)	17.9	20	Ag	8	82	4.0	16	本発明
53	無アルカリガラス	例示化合物(42)	21.7	20	Ag	8	77	5.6	37	本発明
54	無アルカリガラス	例示化合物(43)	9.0	20	Ag	8	81	3.9	19	本発明
55	無アルカリガラス	例示化合物(44)	9.5	20	Ag	8	84	3.9	11	本発明
56	無アルカリガラス	例示化合物(45)	10.9	20	Ag	8	83	4.1	18	本発明
57	無アルカリガラス	例示化合物(46)	9.5	20	Ag	8	81	4.0	14	本発明
58	無アルカリガラス	例示化合物(47)	10.1	20	Ag	8	82	4.0	14	本発明
59	無アルカリガラス	例示化合物(48)	11.4	20	Ag	8	85	3.7	8	本発明
60	無アルカリガラス	例示化合物(49)	11.3	20	Ag	8	86	3.6	9	本発明
61	PET	例示化合物(13)	8.3	20	Ag	8	81	3.8	26	本発明
62	PET	例示化合物(37)	9.5	20	Ag	8	80	4.7	28	本発明
63	PET	例示化合物(48)	11.4	20	Ag	8	82	4.0	15	本発明
64	PET	例示化合物(49)	11.3	20	Ag	8	83	3.9	13	本発明

【0296】

(4) まとめ

表1および2から明らかなように、双極子モーメントが5.0～25.0デバイの範囲

10

20

30

40

50

内である有機化合物を用いた中間層上に銀（A g）を主成分とした導電性層を設けた本発明の透明電極 9～64 は、いずれも光透過率が 54% 以上であり、シート抵抗値が $10.1 \Omega/\square$ 以下に抑えられている。これに対して、比較例の透明電極 1～8 は、光透過率が 54% 未満のものがあ、しかもシート抵抗値が $10.1 \Omega/\square$ を超えるものがあった。

また、耐久性（光透過率の変化量）においても、本発明の透明電極 9～64 が、比較例の透明電極 1～8 と比較して、優れていることがわかる。

【0297】

以上から、本発明の透明電極は、高い光透過率と導電性とを兼ね備え、耐久性に優れていることが確認された。

【実施例 2】

10

【0298】

《発光パネルの作製》

実施例 1 で作製した透明電極 1～64 をアノードとして用いた両面発光型の発光パネル 1～64 を作製した。以下、図 12 を参照して、作製手順を説明する。

【0299】

（1）発光パネル 1 の作製

まず、実施例 1 で作製した、導電性層 1b のみを有する透明電極 1 が形成された透明基板 13 を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、透明電極 1 の形成面側に蒸着マスクを対向配置した。また、真空蒸着装置内の加熱ボートの各々に、発光機能層 3 を構成する各材料を、それぞれの層の成膜に最適な量で充填した。なお、加熱ボートはタングステン製抵抗加熱用材料で作製されたものを用いた。

20

【0300】

次いで、真空蒸着装置の蒸着室内を真空度 4×10^{-4} Pa まで減圧し、各材料が入った加熱ボートを順次通電して加熱することにより、以下のように各層を成膜した。

【0301】

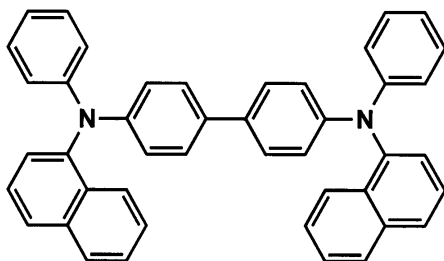
まず、正孔輸送注入材料として下記構造式に示す α -NPD が入った加熱ボートに通電して加熱し、 α -NPD よりなる正孔注入層と正孔輸送層とを兼ねた正孔輸送注入層 31 を、透明電極 1 を構成する導電性層 1b 上に成膜した。この際、蒸着速度 $0.1 \sim 0.2$ nm/秒、層厚 20 nm とした。

【0302】

30

【化 40】

α -NPD



40

【0303】

次いで、ホスト材料 H4 の入った加熱ボートと、リン光発光性化合物 Ir-4 の入った加熱ボートとを、それぞれ独立に通電し、ホスト材料 H4 とリン光発光性化合物 Ir-4 とよりなる発光層 3c を、正孔輸送注入層 31 上に成膜した。この際、蒸着速度がホスト材料 H4：リン光発光性化合物 Ir-4 = 100：6 となるように、加熱ボートの通電を調節した。また、層厚は 30 nm とした。

【0304】

次いで、正孔阻止材料として下記構造式に示す BAlq が入った加熱ボートに通電して加熱し、BAlq よりなる正孔阻止層 33 を、発光層 3c 上に成膜した。この際、蒸着速

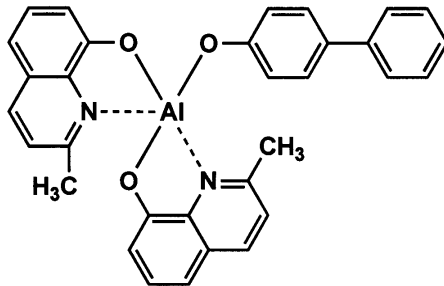
50

度 0.1 ~ 0.2 nm/秒、層厚 10 nm とした。

【0305】

【化41】

BAIq



10

【0306】

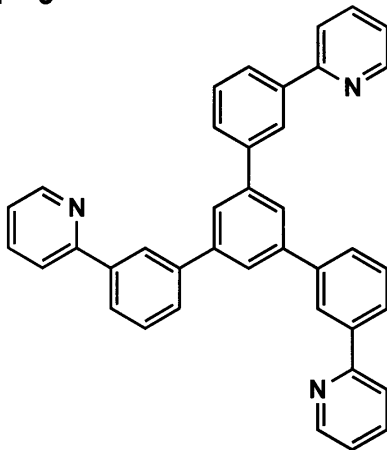
その後、電子輸送材料として下記構造式に示す ET-4 の入った加熱ボートと、フッ化カリウムの入った加熱ボートとを、それぞれ独立に通電し、ET-4 とフッ化カリウムとよりなる電子輸送層 3d を、正孔阻止層 33 上に成膜した。この際、蒸着速度が ET-4 : フッ化カリウム = 75 : 25 になるように、加熱ボートの通電を調節した。また、層厚 30 nm とした。

20

【0307】

【化42】

ET-5



30

【0308】

次に、電子注入材料としてフッ化カリウムの入った加熱ボートに通電して加熱し、フッ化カリウムよりなる電子注入層 3e を、電子輸送層 3d 上に成膜した。この際、蒸着速度 0.01 ~ 0.02 nm/秒、層厚 1 nm とした。

40

【0309】

その後、電子注入層 3e まで成膜した透明基板 13 を、真空蒸着装置の蒸着室から、対向電極材料として ITO のターゲットが取り付けられたスパッタ装置の処理室内に、真空状態を保持したまま移送した。次いで、処理室内において、成膜速度 0.3 ~ 0.5 nm/秒で、膜厚 150 nm の ITO からなる光透過性の対向電極 5a をカソードとして成膜した。以上により、透明基板 13 上に有機 EL 素子 400 を形成した。

【0310】

その後、有機 EL 素子 400 を、厚さ 300 μm のガラス基板からなる封止材 17 で覆い、有機 EL 素子 400 を囲む状態で、封止材 17 と透明基板 13 との間に接着剤 19 (シール材) を充填した。接着剤 19 としては、エポキシ系光硬化型接着剤 (東亜合成社製

50

ラックストラック L C 0 6 2 9 B) を用いた。封止材 1 7 と透明基板 1 3 との間に充填した接着剤 1 9 に対して、ガラス基板 (封止材 1 7) 側から U V 光を照射し、接着剤 1 9 を硬化させて有機 E L 素子 4 0 0 を封止した。

【0 3 1 1】

なお、有機 E L 素子 4 0 0 の形成においては、各層の形成に蒸着マスクを使用し、5 c m × 5 c m の透明基板 1 3 における中央の 4 . 5 c m × 4 . 5 c m を発光領域 A とし、発光領域 A の全周に幅 0 . 2 5 c m の非発光領域 B を設けた。また、アノードである透明電極 1 とカソードである対向電極 5 a とは、正孔輸送注入層 3 1 ~ 電子注入層 3 e までの発光機能層 3 によって絶縁された状態で、透明基板 1 3 の周縁に端子部分を引き出された形状で形成した。

10

【0 3 1 2】

以上のようにして、透明基板 1 3 上に有機 E L 素子 4 0 0 を設け、これを封止材 1 7 と接着剤 1 9 とで封止した発光パネル 2 2 のサンプルである発光パネル 1 を作製した。

発光パネル 1 においては、発光層 3 c で発生した各色の発光光 h が、透明電極 1 側すなわち透明基板 1 3 側と、対向電極 5 a 側すなわち封止材 1 7 側との両方から取り出される。

【0 3 1 3】

(2) 発光パネル 2 ~ 6 4 の作製

発光パネル 1 の作製において、透明電極 1 を透明電極 2 ~ 6 4 に変更した以外は同様にして、発光パネル 2 ~ 6 4 を作製した。

20

【0 3 1 4】

《発光パネルの評価》

作製した発光パネル 1 ~ 6 4 について、下記の方法に従い、光透過率、駆動電圧、および耐久性 (駆動電圧の変化量) の測定を行った。

【0 3 1 5】

(1) 光透過率の測定

作製した各発光パネルについて、分光光度計 (日立製作所製 U - 3 3 0 0) を用い、各発光パネルの透明電極の基材をリファレンスとして、波長 5 5 0 n m における光透過率 (%) を測定した。

測定結果を表 3 および 4 に示す。

30

【0 3 1 6】

(2) 駆動電圧の測定

作製した各発光パネルについて、各発光パネルの透明電極 1 側 (すなわち透明基板 1 3 側) と、対向電極 5 a 側 (すなわち封止材 1 7 側) との両側での正面輝度を測定し、その和が $1 0 0 0 \text{ c d} / \text{m}^2$ となるときの電圧を駆動電圧 (V) として測定した。なお、輝度の測定には、分光放射輝度計 C S - 1 0 0 0 (コニカミノルタ社製) を用いた。得られた駆動電圧の数値が小さいほど、好ましい結果であることを表す。

測定結果を表 3 および 4 に示す。

【0 3 1 7】

(3) 高温保存化における駆動電圧の変化量の測定

40

作製した各発光パネルについて、高温環境 (温度 8 0 °C) 下で、1 5 0 時間保存し、駆動電圧を測定して、その変化量を算出した。

測定結果を表 3 および 4 に示す。

なお、駆動電圧の変化量は、発光パネル 7 の駆動電圧の変化量を 1 0 0 とする相対値で示している。

【0 3 1 8】

【表 3】

発光 パネル No.	基材	透明電極の構成					評価結果			備考
		中間層			導電性層		光透過率 (%)	駆動電圧 (V)	駆動電圧 変化量	
		材料	双極子モーメント(D)	層厚 (nm)	材料	層厚 (nm)				
1	無アルカリガラス	—	—	—	Ag	5	24	発光せず	—	比較例
2	無アルカリガラス	—	—	—	Ag	8	36	発光せず	—	比較例
3	無アルカリガラス	—	—	—	Ag	10	30	5.0	455	比較例
4	無アルカリガラス	—	—	—	Ag	15	18	3.5	334	比較例
5	無アルカリガラス	ET-1	3.0	25	Ag	8	45	4.5	155	比較例
6	無アルカリガラス	ET-2	3.4	25	Ag	8	44	4.3	125	比較例
7	無アルカリガラス	ET-3	4.0	25	Ag	8	48	4.2	100	比較例
8	無アルカリガラス	ET-4	26.6	25	Ag	8	53	4.0	96	比較例
9	無アルカリガラス	例示化合物(1)	5.1	25	Ag	5	65	3.1	66	本発明
10	無アルカリガラス	例示化合物(1)	5.1	25	Ag	8	67	3.1	56	本発明
11	無アルカリガラス	例示化合物(1)	5.1	25	Ag	15	59	3.0	55	本発明
12	無アルカリガラス	例示化合物(1)	5.1	25	Ag	20	57	2.9	55	本発明
13	無アルカリガラス	例示化合物(2)	7.5	25	Ag	8	65	3.1	65	本発明
14	無アルカリガラス	例示化合物(3)	6.9	25	Ag	8	61	3.2	65	本発明
15	無アルカリガラス	例示化合物(4)	5.0	25	Ag	8	75	2.9	44	本発明
16	無アルカリガラス	例示化合物(5)	6.1	25	Ag	8	73	3.1	52	本発明
17	無アルカリガラス	例示化合物(6)	5.7	25	Ag	8	72	3.2	51	本発明
18	無アルカリガラス	例示化合物(7)	7.0	25	Ag	8	75	2.8	44	本発明
19	無アルカリガラス	例示化合物(8)	8.9	25	Ag	8	76	2.9	39	本発明
20	無アルカリガラス	例示化合物(9)	6.0	25	Ag	8	75	3.0	38	本発明
21	無アルカリガラス	例示化合物(10)	5.0	25	Ag	8	76	2.9	46	本発明
22	無アルカリガラス	例示化合物(11)	5.9	25	Ag	8	79	2.7	34	本発明
23	無アルカリガラス	例示化合物(12)	6.1	25	Ag	8	76	2.9	41	本発明
24	無アルカリガラス	例示化合物(13)	8.3	25	Ag	8	80	2.6	30	本発明
25	無アルカリガラス	例示化合物(14)	7.7	25	Ag	8	76	3.0	38	本発明
26	無アルカリガラス	例示化合物(15)	5.0	25	Ag	8	74	2.9	39	本発明
27	無アルカリガラス	例示化合物(16)	7.1	25	Ag	8	73	2.9	40	本発明
28	無アルカリガラス	例示化合物(17)	7.7	25	Ag	8	73	2.9	38	本発明
29	無アルカリガラス	例示化合物(18)	5.5	25	Ag	8	73	2.9	40	本発明
30	無アルカリガラス	例示化合物(19)	5.0	25	Ag	8	74	2.9	38	本発明
31	無アルカリガラス	例示化合物(20)	6.4	25	Ag	8	75	2.9	44	本発明
32	無アルカリガラス	例示化合物(21)	8.9	25	Ag	8	76	2.8	41	本発明

【表 4】

発光 パネル No.	基材	透明電極の構成					評価結果			備考		
		中間層			導電性層		光透過率 (%)	駆動電圧 (V)	駆動電圧 変化量			
		材料	双極子モーメント(D)	層厚 (nm)	材料	層厚 (nm)						
33	無アルカリガラス	例示化合物 (22)		8.8		25	Ag	8	75	3.0	42	本発明
34	無アルカリガラス	例示化合物 (23)		7.3		25	Ag	8	75	2.9	38	本発明
35	無アルカリガラス	例示化合物 (24)		6.3		25	Ag	8	74	2.9	42	本発明
36	無アルカリガラス	例示化合物 (25)		8.1		25	Ag	8	73	2.9	46	本発明
37	無アルカリガラス	例示化合物 (26)		8.8		25	Ag	8	75	3.0	39	本発明
38	無アルカリガラス	例示化合物 (27)		9.9		25	Ag	8	80	2.6	31	本発明
39	無アルカリガラス	例示化合物 (28)		9.0		25	Ag	8	76	3.0	44	本発明
40	無アルカリガラス	例示化合物 (29)		12.5		25	Ag	8	81	2.7	33	本発明
41	無アルカリガラス	例示化合物 (30)		9.9		25	Ag	8	78	2.5	31	本発明
42	無アルカリガラス	例示化合物 (31)		10.1		25	Ag	8	79	2.5	32	本発明
43	無アルカリガラス	例示化合物 (32)		9.5		25	Ag	8	79	2.6	33	本発明
44	無アルカリガラス	例示化合物 (33)		9.5		25	Ag	8	81	2.5	32	本発明
45	無アルカリガラス	例示化合物 (34)		9.5		25	Ag	8	78	2.6	32	本発明
46	無アルカリガラス	例示化合物 (35)		11.4		25	Ag	8	78	2.7	32	本発明
47	無アルカリガラス	例示化合物 (36)		12.1		25	Ag	8	78	2.5	33	本発明
48	無アルカリガラス	例示化合物 (37)		9.5		25	Ag	8	79	2.7	33	本発明
49	無アルカリガラス	例示化合物 (38)		12.9		25	Ag	8	78	2.6	32	本発明
50	無アルカリガラス	例示化合物 (39)		11.7		25	Ag	8	78	2.6	30	本発明
51	無アルカリガラス	例示化合物 (40)		10.5		25	Ag	8	75	2.9	42	本発明
52	無アルカリガラス	例示化合物 (41)		17.9		25	Ag	8	79	2.6	32	本発明
53	無アルカリガラス	例示化合物 (42)		21.7		25	Ag	8	75	3.0	43	本発明
54	無アルカリガラス	例示化合物 (43)		9.0		25	Ag	8	78	2.6	33	本発明
55	無アルカリガラス	例示化合物 (44)		9.5		25	Ag	8	80	2.7	34	本発明
56	無アルカリガラス	例示化合物 (45)		10.9		25	Ag	8	80	2.5	30	本発明
57	無アルカリガラス	例示化合物 (46)		9.5		25	Ag	8	81	2.5	34	本発明
58	無アルカリガラス	例示化合物 (47)		10.1		25	Ag	8	78	2.6	31	本発明
59	無アルカリガラス	例示化合物 (48)		11.4		25	Ag	8	83	2.4	28	本発明
60	無アルカリガラス	例示化合物 (49)		11.3		25	Ag	8	82	2.3	28	本発明
61	PET	例示化合物 (13)		8.3		25	Ag	8	77	2.6	28	本発明
62	PET	例示化合物 (37)		9.5		25	Ag	8	77	2.6	39	本発明
63	PET	例示化合物 (48)		11.4		25	Ag	8	80	2.5	34	本発明
64	PET	例示化合物 (49)		11.3		25	Ag	8	80	2.4	32	本発明

【0320】

(4) まとめ

表3および4から明らかなように、本発明の透明電極を有機EL素子のアノードに用い

10

20

30

40

50

た発光パネル 9～64 は、いずれも光透過率が 51% 以上であり、かつ駆動電圧が 3.4 V 以下に抑えられている。これに対して、比較例の透明電極を有機 EL 素子のアノードに用いた発光パネル 1～8 は、光透過率が 51% 未満のものがあ、しかも、電圧を印加しても発光しないか、または発光しても駆動電圧が 3.4 V を超えていた。

また、耐久性（駆動電圧の変化量）においても、本発明の透明電極を用いた発光パネル 9～64、比較例の透明電極を用いた発光パネル 1～8 と比較して、優れていることがわかる。

【0321】

これにより、本発明の透明電極を用いた発光パネルは、低い駆動電圧で高輝度発光が可能であることが確認された。また、これにより、所定輝度を得るための駆動電圧の低減と、発光寿命の向上が見込まれることが確認された。

10

【産業上の利用可能性】

【0322】

本発明は、十分な導電性と光透過性とを兼ね備え、かつ耐久性に優れた透明電極、当該透明電極を備えた電子デバイスおよび有機 EL 素子を提供することに、特に好適に利用することができる。

【符号の説明】

【0323】

1 透明電極

1 a 中間層

1 b 導電性層

20

3 発光機能層

3 a 正孔注入層

3 b 正孔輸送層

3 c 発光層

3 d 電子輸送層

3 e 電子注入層

5 a、5 b、5 c 対向電極

11 基材

13、131 透明基板（基材）

30

13 a、131 a 光取り出し面

15 補助電極

17 封止材

19 接着剤

21 照明装置

22 発光パネル

23 支持基板

31 正孔輸送注入層

33 正孔阻止層

100、200、300、400 有機 EL 素子

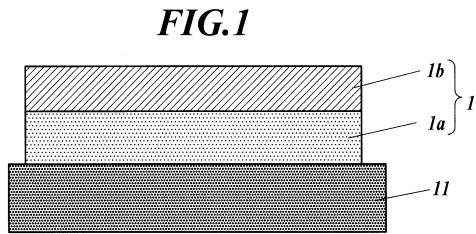
40

A 発光領域

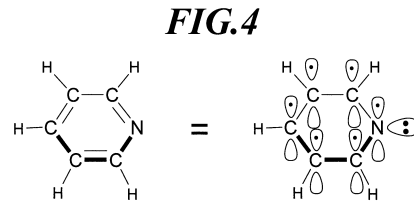
B 非発光領域

h 発光光

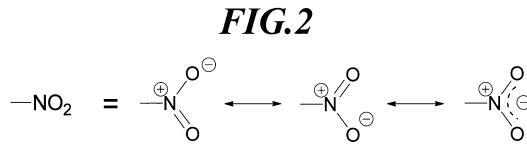
【図 1】



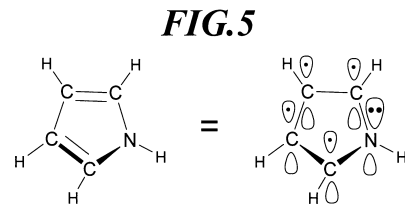
【図 4】



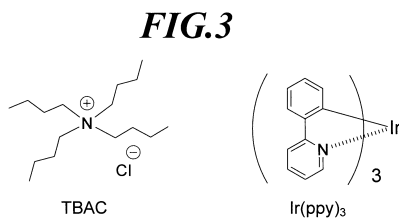
【図 2】



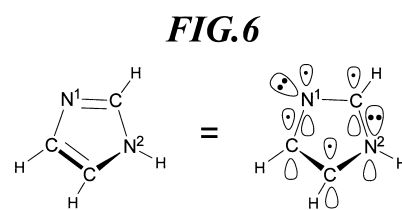
【図 5】



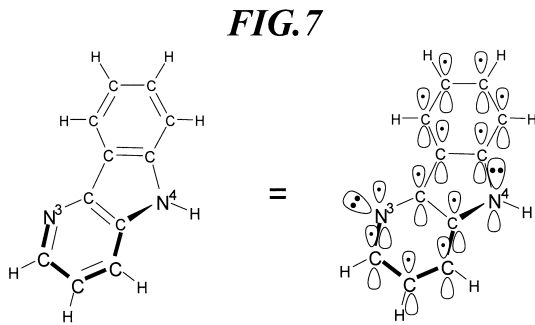
【図 3】



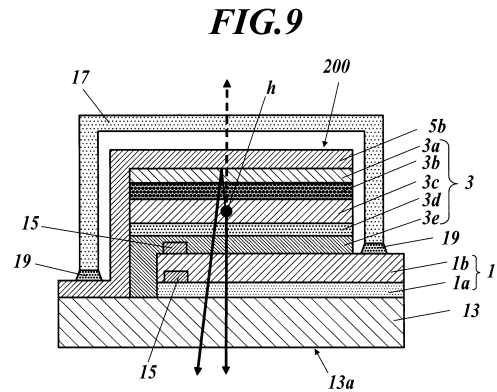
【図 6】



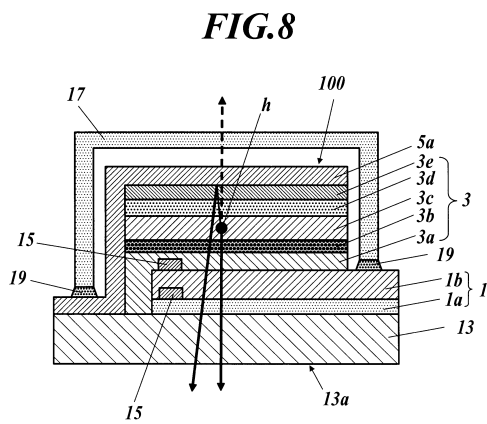
【図 7】



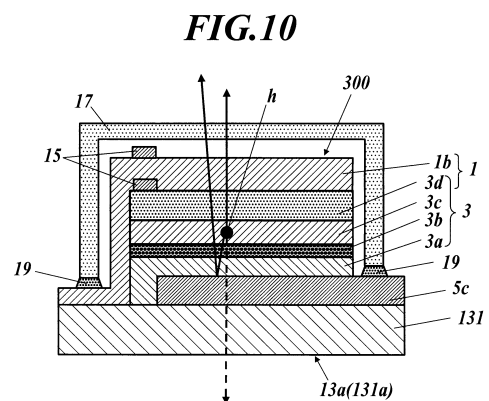
【図 9】



【図 8】



【図 10】



【図 1 2】

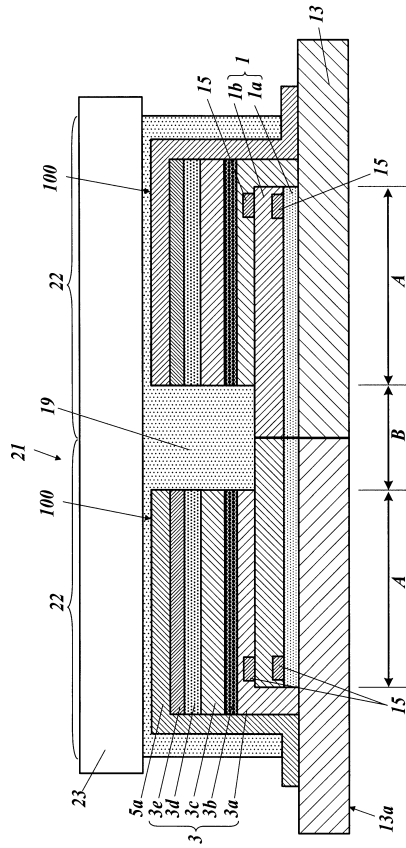


Fig. 1 is a cross-sectional view of a device 22. It features a top layer 17 with a thickness h . Below this is a central core 400. The core is surrounded by a series of layers and structures: a layer 3, which includes sub-layers 3a, 3e, 3d, 33, 3c, and 31; a layer 19; a layer 1b; a layer 1a; and a bottom layer 13. The device is shown with dimensions B , A , and B at the bottom.

フロントページの続き

(出願人による申告) 平成25年度独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構「次世代高効率・高品質照明の基盤技術開発／有機EL照明の高効率・高品質化に係る基盤技術開発」共同研究 産業技術力強化法第19条の適用を受ける特許出願

早期審査対象出願

(72)発明者 波木井 健
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

合議体

審判長 樋口 信宏

審判官 宮澤 浩

審判官 河原 正

(56)参考文献 国際公開第2011/135901 (WO, A1)
特開2007-103174 (JP, A)
特開2011-77028 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H01L51/50-51/56
H05B33/00-33/28