

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2017-123460

(P2017-123460A)

(43) 公開日 平成29年7月13日(2017.7.13)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>HO 1 L 51/50</b> (2006.01)	HO 5 B 33/14	B 3 K 1 0 7
<b>HO 5 B 33/10</b> (2006.01)	HO 5 B 33/22	B 4 C 0 5 0
C O 7 D 405/14 (2006.01)	HO 5 B 33/10	4 C 0 6 3
C O 7 D 403/14 (2006.01)	C O 7 D 405/14	4 C 0 7 2
C O 7 D 519/00 (2006.01)	C O 7 D 403/14	

審査請求 未請求 請求項の数 17 O L (全 67 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2016-240642 (P2016-240642)  
 (22) 出願日 平成28年12月12日 (2016.12.12)  
 (31) 優先権主張番号 特願2016-1236 (P2016-1236)  
 (32) 優先日 平成28年1月6日 (2016.1.6)  
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(71) 出願人 000001270  
 コニカミノルタ株式会社  
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号  
 (74) 代理人 110001807  
 特許業務法人磯野国際特許商標事務所  
 (72) 発明者 石代 圭子  
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号コニ  
 カミノルタ株式会社内  
 (72) 発明者 大津 信也  
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号コニ  
 カミノルタ株式会社内  
 (72) 発明者 関根 昇  
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号コニ  
 カミノルタ株式会社内

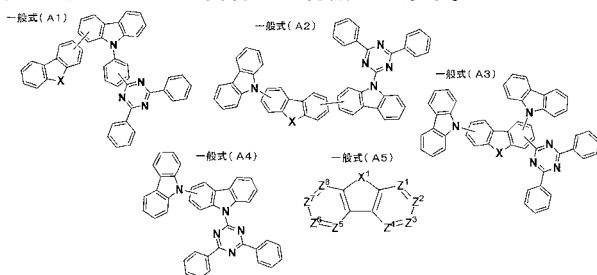
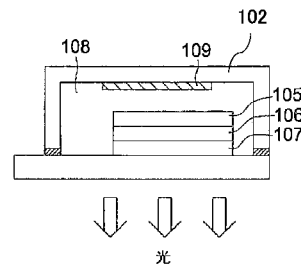
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、表示装置及び照明装置

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 発光効率が高く、高温下で保存した後においても発光強度の経時変化が小さく、更に高温下での発光寿命が長い有機EL素子及びその製造方法を提供する。

【解決手段】 少なくとも1対の陽極と陰極により挟まれた有機層106を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、有機層106が発光層を含む少なくとも1層からなり、有機層106のうち少なくとも1層が下記一般式(A1)~(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを含有する有機EL素子。



【選択図】 図4

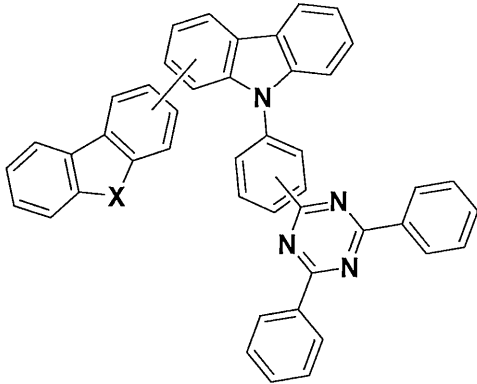
## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

少なくとも 1 対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも 1 層からなり、該有機層のうち少なくとも 1 層が下記一般式 (A 1) ~ (A 5) で表される化合物のうち少なくとも 1 つを含有す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。

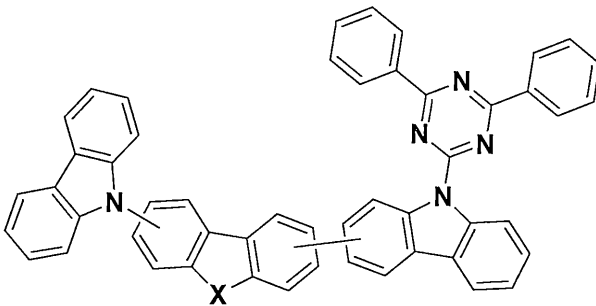
## 【化 1】

## 一般式 (A 1)



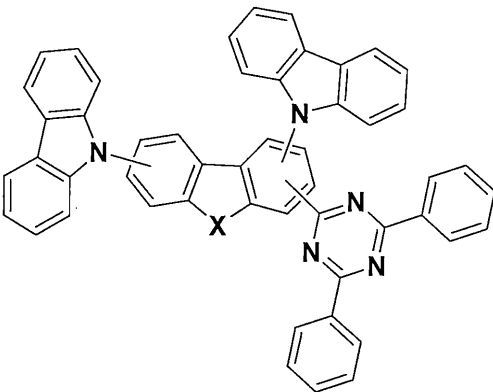
10

## 一般式 (A 2)



20

## 一般式 (A 3)



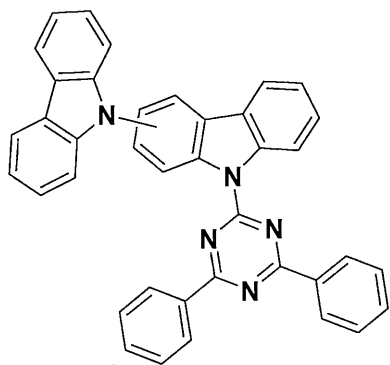
30

[ 一般式 (A 1) ~ (A 3) 中、X は酸素原子又は硫黄原子を表す。 ]

40

## 【化 2】

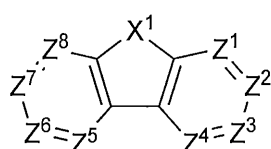
## 一般式 (A 4)



10

## 【化 3】

## 一般式 (A 5)

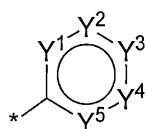


〔式中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^4$  のうち少なくとも 1 つは  $=N-$  を表す。但し、 $Z^4$  が  $=N-$  の場合、 $Z^1$  は  $=N-$  又は  $=C(R^2)-$  を表し、 $R^2$  は下記一般式 (A 5 - 1) の含窒素 6 員複素環又は下記一般式 (A 5 - 2) の含窒素 5 員環を表す。また、 $Z^4$  が  $=C(R^1)-$  の場合、少なくとも  $Z^3$  は  $=N-$  を表す。〕

20

## 【化 4】

## 一般式 (A 5 - 1)

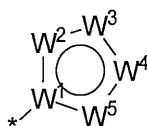


30

〔式中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも 1 つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A 5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に 2 個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

## 【化 5】

## 一般式 (A 5 - 2)



40

〔式中、 $W^1$  は  $N$  又は  $=C-$  を表し、 $W^2 \sim W^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^4)-$  を表し、 $R^4$  は水素原子又は置換基を表し、 $W^1 \sim W^5$  のうち少なくとも 1 つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A 5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^4)-$  が隣接する位置に 2 個連続する場合、 $R^4$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

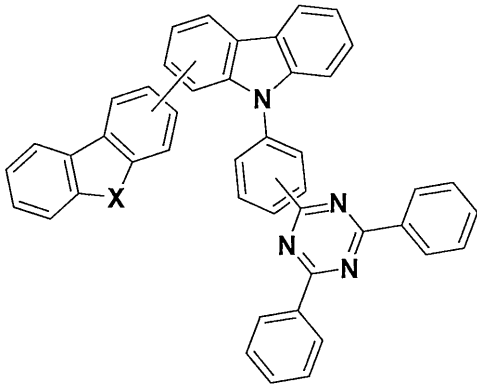
## 【請求項 2】

少なくとも 1 対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも 1 層からなり、該有機層のうち少なくとも 1 層が下記一般式 (A 1) ~ (A 5) で表される化合物のうち少なくとも 1 つを含有す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。

50

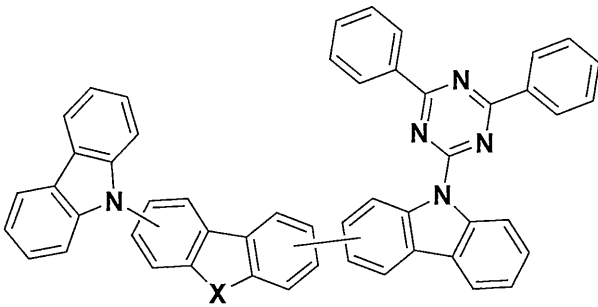
【化 6】

一般式 (A 1)



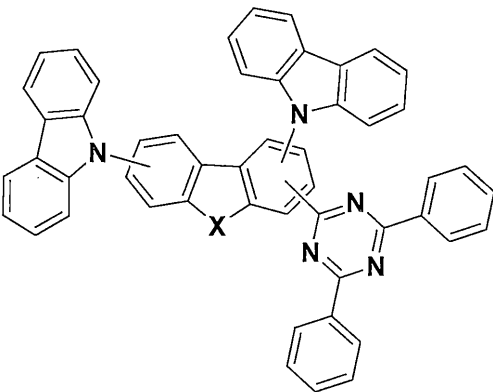
10

一般式 (A 2)



20

一般式 (A 3)

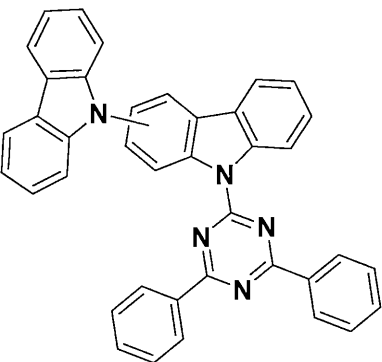


30

〔一般式 (A 1) ~ (A 3) 中、X は酸素原子又は硫黄原子を表す。〕

【化 7】

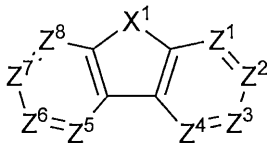
一般式 (A 4)



40

## 【化 8】

## 一般式 (A 5)

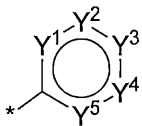


〔式中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^4$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、残りの  $Z^1 \sim Z^4$  は  $=C(R^1)$  であり、前記残りの  $Z^1 \sim Z^4$  における  $R^1$  のうちの少なくとも1つは、下記一般式 (A 5 - 1) の含窒素6員複素環である。〕

10

## 【化 9】

## 一般式 (A 5 - 1)



〔式中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A 5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

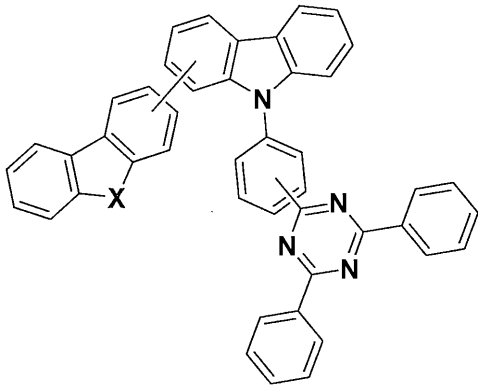
20

## 【請求項 3】

少なくとも1対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも1層からなり、該有機層のうち少なくとも1層が下記一般式 (A 1) ~ (A 5) で表される化合物のうち少なくとも1つを含有す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。

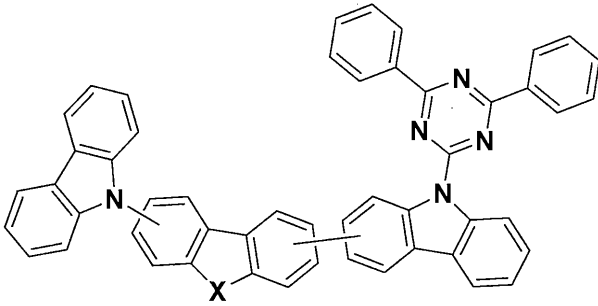
【化 1 0】

一般式 (A 1)



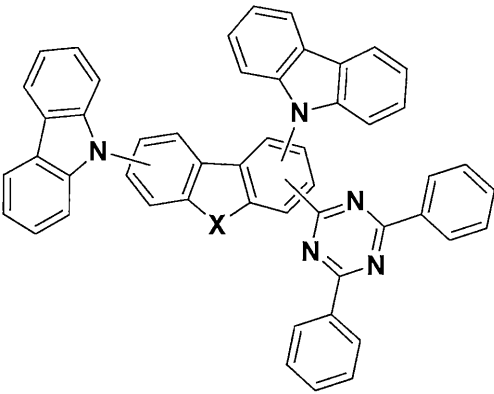
10

一般式 (A 2)



20

一般式 (A 3)

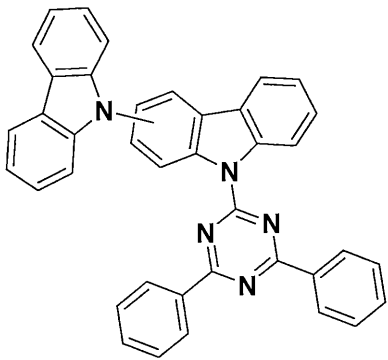


30

〔一般式 (A 1) ~ (A 3) 中、X は酸素原子又は硫黄原子を表す。〕

【化 1 1】

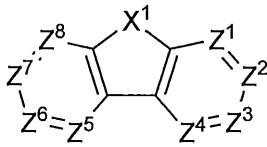
一般式 (A 4)



40

## 【化 1 2】

## 一般式 (A 5)

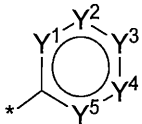


〔式中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^3$  は  $=C(R^1)-$  を表し、 $Z^4$  は  $=N-$  を表し、 $Z^5 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^3$  の  $R^1$  うち少なくとも1つは下記一般式 (A 5 - 1) の含窒素6員複素環である。〕

10

## 【化 1 3】

## 一般式 (A 5 - 1)



〔式中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A 5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

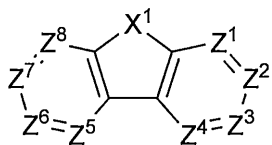
20

## 【請求項 4】

前記有機層のうち少なくとも1層が下記一般式 (A 5) で表される化合物を含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 1 4】

## 一般式 (A 5)

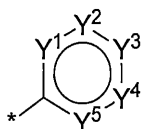


〔式中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^4$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、残りの  $Z^1 \sim Z^4$  は  $=C(R^1)$  であり、前記残りの  $Z^1 \sim Z^4$  における  $R^1$  のうちの少なくとも1つは、下記一般式 (A 5 - 1) の含窒素6員複素環である。〕

30

## 【化 1 5】

## 一般式 (A 5 - 1)



〔式中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A 5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

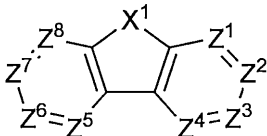
40

## 【請求項 5】

前記有機層のうち少なくとも1層が下記一般式 (A 5) で表される化合物を含有することを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 16】

## 一般式 (A5)

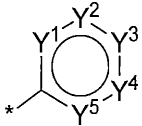


〔式中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^3$  は  $=C(R^1)-$  を表し、 $Z^4$  は  $=N-$  を表し、 $Z^5 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^3$  の  $R^1$  うち少なくとも1つは下記一般式 (A5-1) の含窒素6員複素環である。〕

10

## 【化 17】

## 一般式 (A5-1)



〔式中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

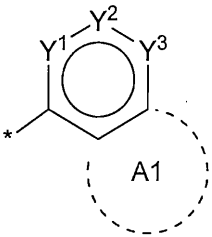
20

## 【請求項 6】

前記一般式 (A5-1) は、下記一般式 (A5-3) 又は下記一般式 (A5-4) で表されることを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 18】

## 一般式 (A5-3)

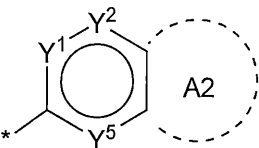


30

〔式中、 $Y^1 \sim Y^3$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^3$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A5) との連結位置を表す。A1 は、6員のアリール、6員ヘテロアリール又は5員ヘテロアリールを形成する残基を表す。〕

## 【化 19】

## 一般式 (A5-4)



40

〔式中、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A5) との連結位置を表す。A2 は、6員のアリール、6員ヘテロアリール又は5員ヘテロアリールを形成する残基を表す。〕

50

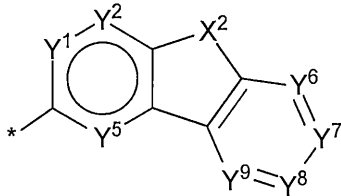


## 【請求項 7】

前記一般式 (A5-1) は、前記一般式 (A5-4) で表され、前記一般式 (A5-4) は、下記一般式 (A5-5) 又は下記一般式 (A5-6) で表されることを特徴とする請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 20】

## 一般式 (A5-5)

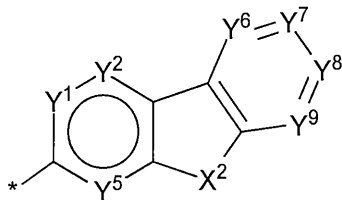


10

〔式中、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5 \sim Y^9$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A5) との連結位置を表す。 $X^2$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^2-$ 、 $-CR^3R^4-$  のいずれかを表す。 $R^2$ 、 $R^4$  は、それぞれ前記した  $R^2$ 、 $R^4$  と同義である。〕

## 【化 21】

## 一般式 (A5-6)



20

〔式中、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5 \sim Y^9$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A5) との連結位置を表す。 $X^2$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^2-$ 、 $-CR^3R^4-$  のいずれかを表す。 $R^2$ 、 $R^4$  は、それぞれ前記した  $R^2$ 、 $R^4$  と同義である。〕

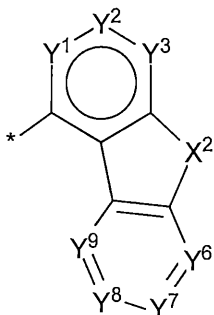
30

## 【請求項 8】

前記一般式 (A5-1) は、前記一般式 (A5-3) で表され、前記一般式 (A5-3) は、下記一般式 (A5-7) 又は下記一般式 (A5-8) で表されることを特徴とする請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 22】

## 一般式 (A5-7)



40

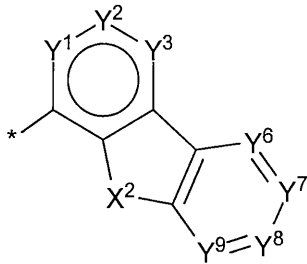
〔式中、 $Y^1 \sim Y^3$ 、 $Y^6 \sim Y^9$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^3$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は

50

一般式 (A5) との連結位置を表す。X<sup>2</sup> は、-O-, -S-, -NR<sup>2</sup>-, -CR<sup>3</sup>R<sup>4</sup>- のいずれかを表す。R<sup>2</sup>、R<sup>4</sup> は、それぞれ前記した R<sup>2</sup>、R<sup>4</sup> と同義である。]

【化23】

一般式(A5-8)



10

[式中、Y<sup>1</sup> ~ Y<sup>3</sup>、Y<sup>6</sup> ~ Y<sup>9</sup> はそれぞれ独立に =N- 又は =C(R<sup>3</sup>)- を表し、R<sup>3</sup> は水素原子又は置換基を表し、Y<sup>1</sup> ~ Y<sup>3</sup> のうち少なくとも1つは =N- を表し、\* は一般式 (A5) との連結位置を表す。X<sup>2</sup> は、-O-, -S-, -NR<sup>2</sup>-, -CR<sup>3</sup>R<sup>4</sup>- のいずれかを表す。R<sup>2</sup>、R<sup>4</sup> は、それぞれ前記した R<sup>2</sup>、R<sup>4</sup> と同義である。]

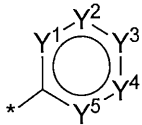
【請求項9】

前記含窒素6員複素環が、下記一般式(A5-1)の含窒素6員複素環であることを特徴とする請求項1~5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化24】

20

一般式(A5-1)



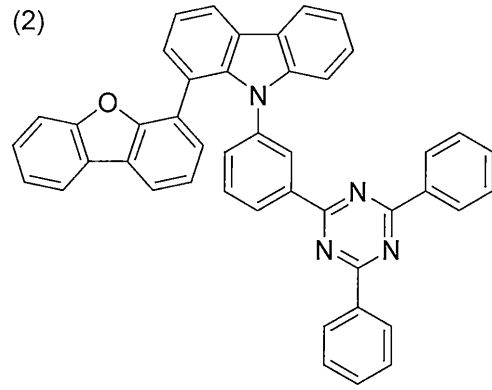
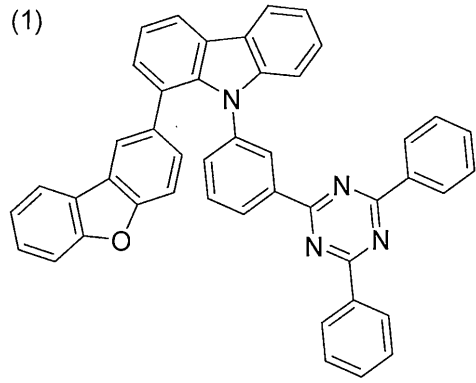
[式中、Y<sup>3</sup> は =N- を表し、Y<sup>1</sup>、Y<sup>2</sup>、Y<sup>4</sup>、Y<sup>5</sup> は =C(R<sup>3</sup>)- を表し、R<sup>3</sup> は水素原子又は置換基を表し、\* は一般式 (A5) との連結位置を表す。Y<sup>1</sup> と Y<sup>2</sup>、又は、Y<sup>4</sup> と Y<sup>5</sup> は互いに縮合して環を形成しても良い。]

【請求項10】

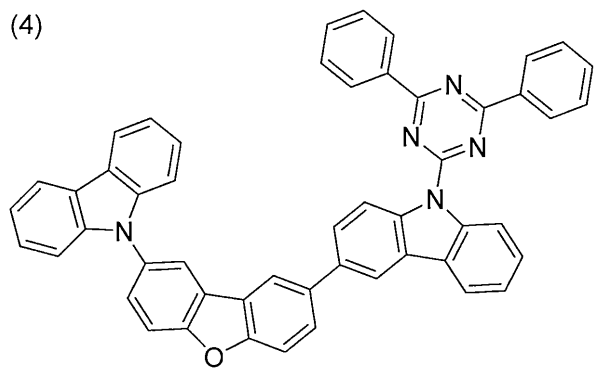
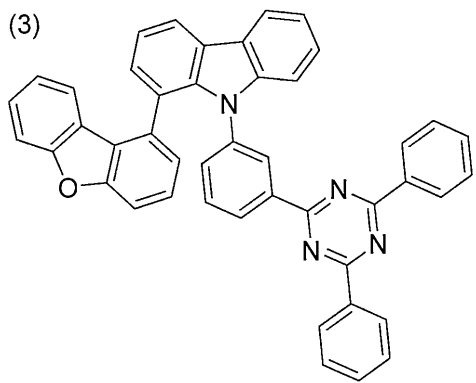
前記一般式(A1)~(A5)で表される化合物が下記化合物(1)~(14)で表されることを特徴とする請求項1~9のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

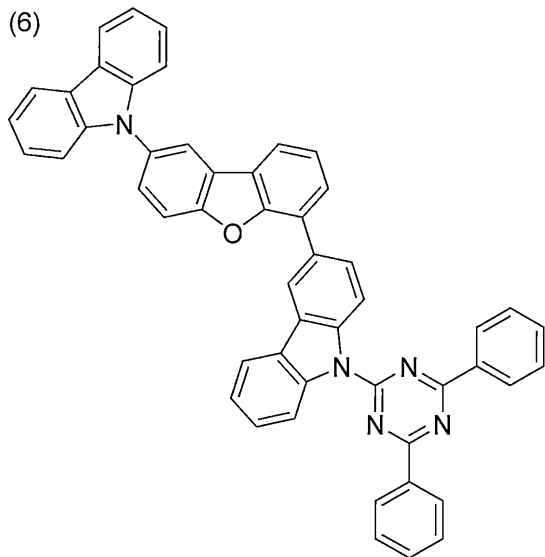
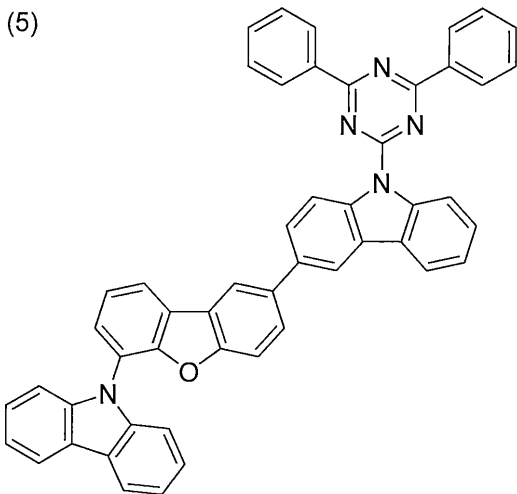
【化 2 5】



10



20

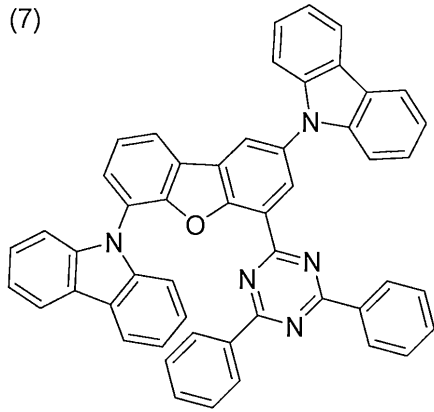


30

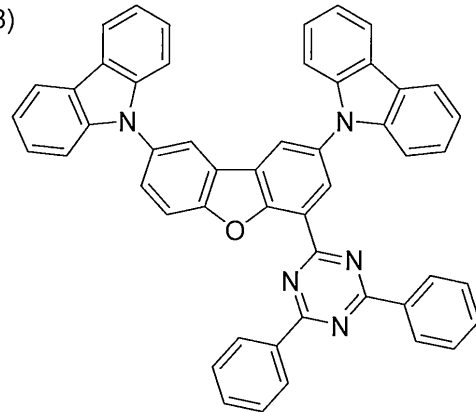
40

【化 2 6】

(7)

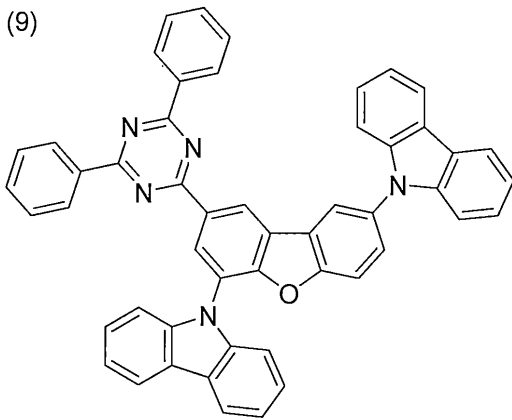


(8)

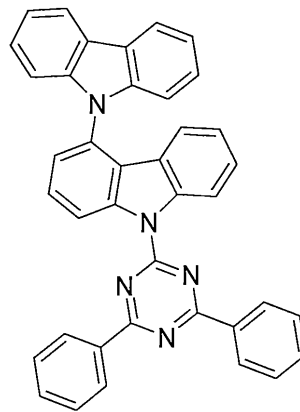


10

(9)

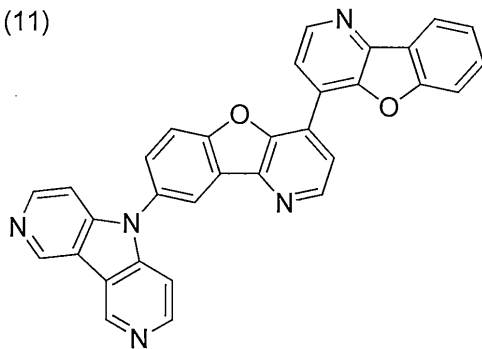


(10)

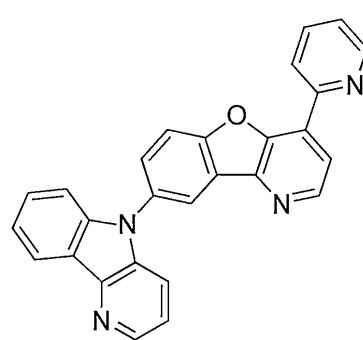


20

(11)

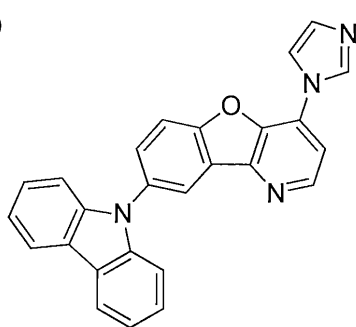


(12)

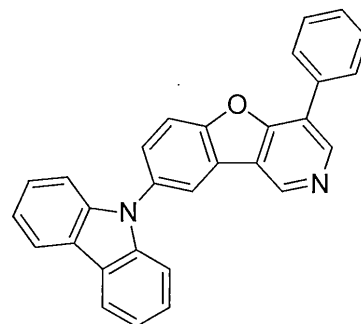


30

(13)



(14)



40

【請求項 1 1】

前記発光層が前記一般式(A1)~(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを

50

含有することを特徴とする請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 12】

前記発光層がリン光発光性ドーパントを含有することを特徴とする請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 13】

前記リン光発光性ドーパントが Ir 錯体であることを特徴とする請求項 12 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 14】

前記有機層が電子輸送層を含み、該電子輸送層が前記一般式 (A1) ~ (A5) で表される化合物のうち少なくとも 1 つを含有することを特徴とする請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【請求項 15】

請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子をウェットプロセスで作製す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の製造方法。

【請求項 16】

請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする表示装置。

【請求項 17】

請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする照明装置。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、表示装置及び照明装置に関する。

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、「有機 EL 素子」ともいう）は、陽極と陰極の間を、有機発光物質が含有された有機薄膜層（単層部又は多層部）で構成する薄膜型の全固体素子である。この様な有機 EL 素子に電圧を印加すると、有機薄膜層に陰極から電子が、陽極から正孔が注入され、これらが発光層（有機発光物質含有層）において再結合して励起子が生じる。有機 EL 素子はこれら励起子からの光の放出（蛍光・リン光）を利用した発光素子であり、次世代の平面ディスプレイや照明として期待されている技術である。

30

【0003】

更に、蛍光発光を利用する有機 EL 素子に比べ、原理的に約 4 倍の発光効率を実現可能である励起三重項からのリン光発光を利用する有機 EL 素子がプリンストン大学から報告されて以来、室温でリン光を示す材料の開発を始めとし、発光素子の層構成や電極の研究開発が世界中で行われている。

40

【0004】

このように、リン光発光方式は大変ポテンシャルの高い方式であるが、リン光発光を利用する有機 EL デバイスにおいては、蛍光発光を利用するそれとは大きく異なり、発光中心の位置をコントロールする方法、とりわけ発光層の内部で再結合を行い、いかに発光を安定に行わせることができるかが、素子の発光効率・発光寿命を高める上で重要な技術的問題となっている。

【0005】

そこで、発光層には発光ドーパントとしてのリン光発光性化合物とホスト化合物とを用いた混合層が多く用いられている。

【0006】

50

一方、材料の観点からは、素子性能向上に対する新規材料創出の期待が大きい。例えば、リン光発光性化合物のホスト化合物として特定のトリアジン化合物あるいは特定の縮合芳香族複素環化合物が報告されている（特許文献1、2参照）。

【0007】

特許文献1、2に記載のこれらの特定の化合物をホスト化合物として用いた素子の発光効率はかなり改良されるようになった。しかしながら、これらの化合物を成膜した有機EL素子を高温下で保存した後、発光強度の著しい低下が見られた。更に、高温下での発光寿命においても室温での寿命に比べて短くなることが明らかになった。また、発光効率においても更に改良の余地がある。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】国際公開第2011/019156号

【特許文献2】国際公開第2010/083359号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

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、有機EL素子用の特定の芳香族複素環誘導体を用いた、発光効率が高く、高温下で保存した後も発光強度の経時変化が小さく、更に高温下での発光寿命が長い有機EL素子及び当該有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を提供することである。また、当該有機EL素子が具備された表示装置及び照明装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0010】

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、特定構造を有する芳香族複素環誘導体が、上記課題の解決に有効であることを見出し本発明に至った。

【0011】

すなわち、本発明に係る上記課題は、以下の手段により解決される。

【0012】

1. 少なくとも1対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも1層からなり、該有機層のうち少なくとも1層が下記一般式(A1)～(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを含有す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。

【0013】

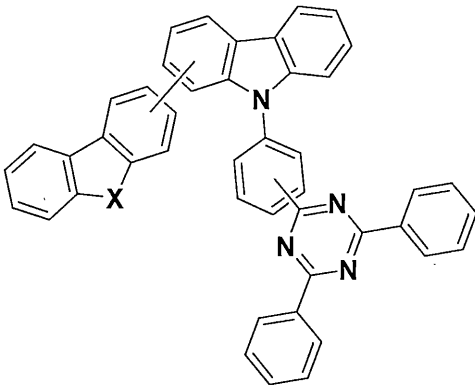
10

20

30

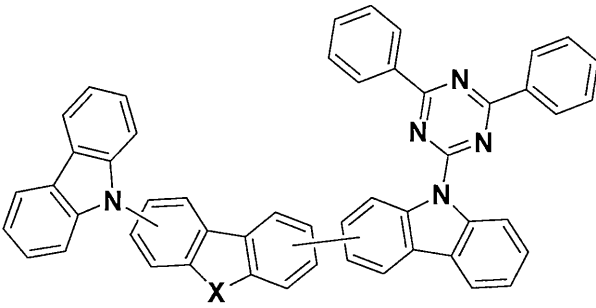
【化1】

一般式 (A1)



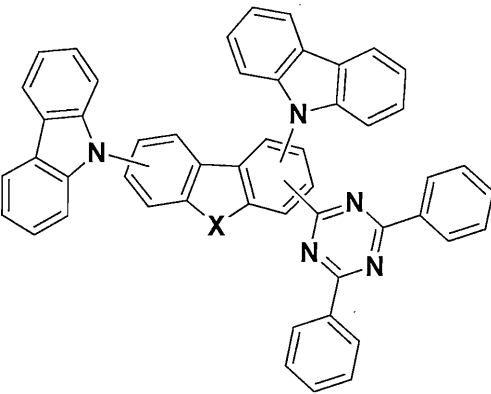
10

一般式 (A2)



20

一般式 (A3)



30

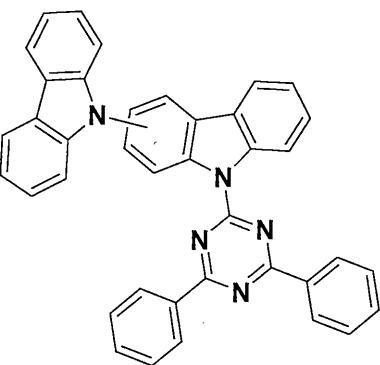
【0014】

〔一般式 (A1) ~ (A3) 中、X は酸素原子又は硫黄原子を表す。〕

【0015】

【化2】

一般式 (A4)

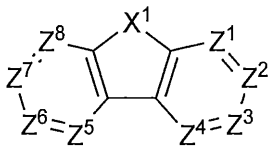


40

【0016】

## 【化3】

## 一般式(A5)



## 【0017】

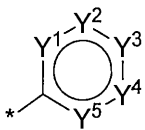
〔式中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^4$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表す。但し、 $Z^4$  が  $=N-$  の場合、 $Z^1$  は  $=N-$  又は  $=C(R^2)-$  を表し、 $R^2$  は下記一般式(A5-1)の含窒素6員複素環又は下記一般式(A5-2)の含窒素5員環を表す。また、 $Z^4$  が  $=C(R^1)-$  の場合、少なくとも  $Z^3$  は  $=N-$  を表す。〕

10

## 【0018】

## 【化4】

## 一般式(A5-1)



20

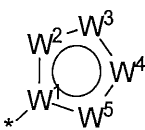
## 【0019】

〔式中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

## 【0020】

## 【化5】

## 一般式(A5-2)



30

## 【0021】

〔式中、 $W^1$  はN又は  $=C-$  を表し、 $W^2 \sim W^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^4)-$  を表し、 $R^4$  は水素原子又は置換基を表し、 $W^1 \sim W^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。但し、 $=C(R^4)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^4$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

## 【0022】

2. 少なくとも1対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも1層からなり、該有機層のうち少なくとも1層が下記一般式(A1)～(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを含有す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。

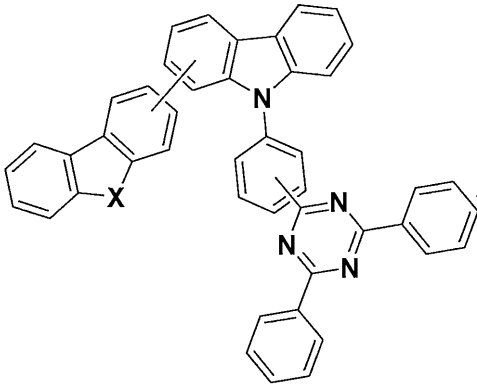
40

## 【0023】



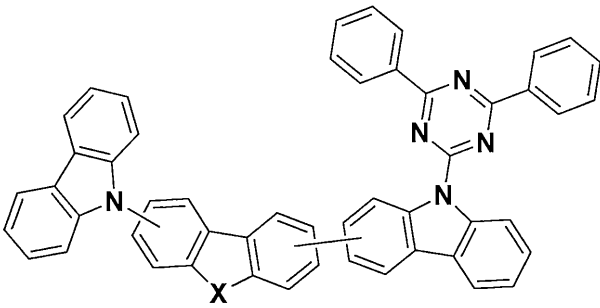
【化6】

一般式 (A1)



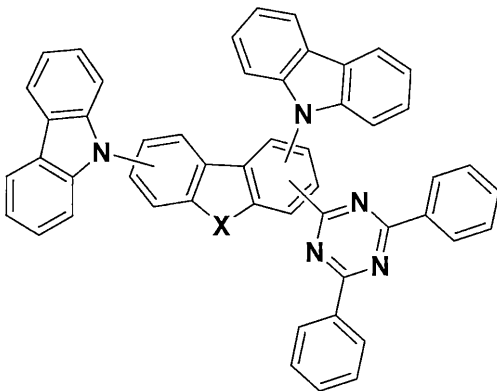
10

一般式 (A2)



20

一般式 (A3)



30

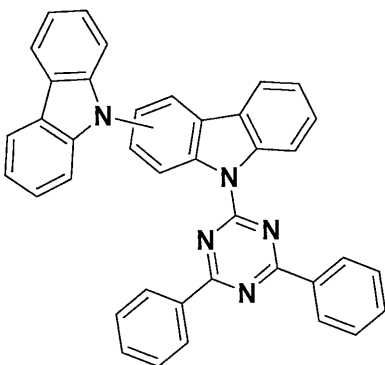
【0024】

〔一般式 (A1) ~ (A3) 中、X は酸素原子又は硫黄原子を表す。〕

【0025】

【化7】

一般式 (A4)

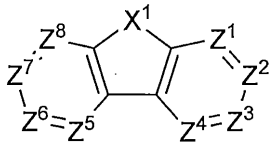


40

【0026】

【化 8】

一般式 (A 5)



【0027】

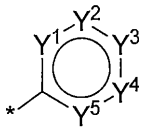
〔式中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^4$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、残りの  $Z^1 \sim Z^4$  は  $=C(R^1)$  であり、前記残りの  $Z^1 \sim Z^4$  における  $R^1$  のうちの少なくとも1つは、下記一般式 (A 5 - 1) の含窒素6員複素環である。〕

10

【0028】

【化 9】

一般式 (A 5 - 1)



20

【0029】

〔式中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A 5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

【0030】

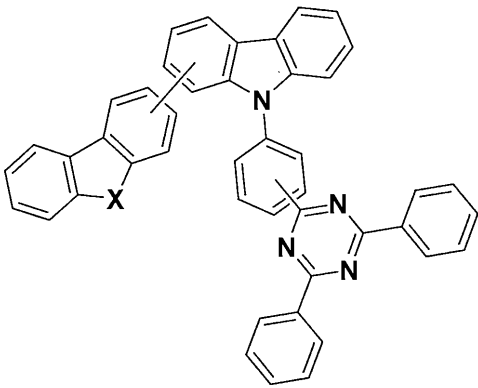
3. 少なくとも1対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも1層からなり、該有機層のうち少なくとも1層が下記一般式 (A 1) ~ (A 5) で表される化合物のうち少なくとも1つを含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

【0031】

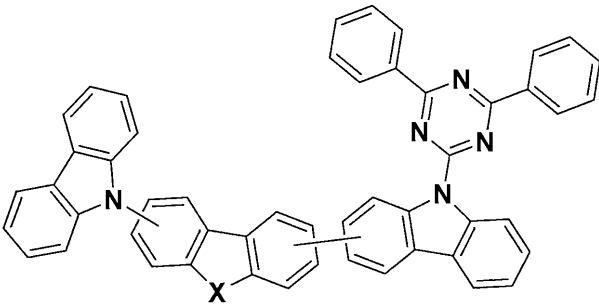
【化 1 0】

一般式 (A 1)



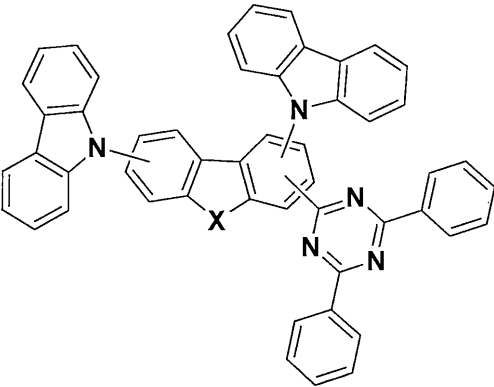
10

一般式 (A 2)



20

一般式 (A 3)



30

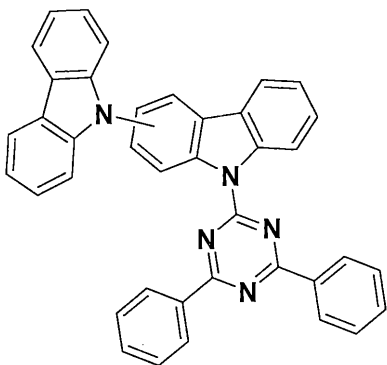
【 0 0 3 2】

〔一般式 (A 1) ~ (A 3) 中、X は酸素原子又は硫黄原子を表す。〕

【 0 0 3 3】

【化 1 1】

一般式 (A 4)

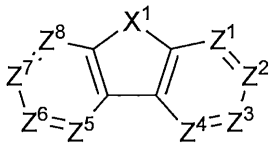


40

【 0 0 3 4】

【化 1 2】

一般式 (A 5)



【0035】

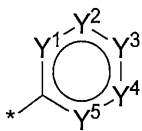
〔式中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^3$  は  $=C(R^1)-$  を表し、 $Z^4$  は  $=N-$  を表し、 $Z^5 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^3$  の  $R^1$  うち少なくとも1つは下記一般式 (A 5 - 1) の含窒素6員複素環である。〕

10

【0036】

【化 1 3】

一般式 (A 5 - 1)



【0037】

〔式中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A 5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。〕

20

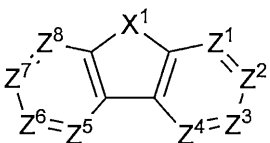
【0038】

4. 前記有機層のうち少なくとも1層が下記一般式 (A 5) で表される化合物を含有することを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0039】

【化 1 4】

一般式 (A 5)



30

【0040】

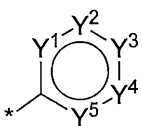
〔式中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^4$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、残りの  $Z^1 \sim Z^4$  は  $=C(R^1)-$  であり、前記残りの  $Z^1 \sim Z^4$  における  $R^1$  のうちの少なくとも1つは、下記一般式 (A 5 - 1) の含窒素6員複素環である。〕

40

【0041】

【化 1 5】

一般式 (A 5 - 1)



【0042】

〔式中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子

50

又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$ のうち少なくとも1つは $=N-$ を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$ が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$ は互いに縮合して環を形成しても良い。]

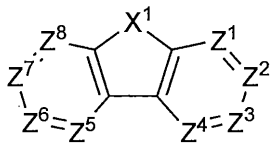
【0043】

5. 前記有機層のうち少なくとも1層が下記一般式(A5)で表される化合物を含有することを特徴とする前記1又は前記2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0044】

【化16】

一般式(A5)



10

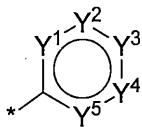
【0045】

[式中、 $X^1$ は酸素原子又は硫黄原子を表し、 $Z^1 \sim Z^3$ は $=C(R^1)-$ を表し、 $Z^4$ は $=N-$ を表し、 $Z^5 \sim Z^8$ はそれぞれ独立に $=N-$ 又は $=C(R^1)-$ を表し、 $R^1$ は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^3$ の $R^1$ のうち少なくとも1つは下記一般式(A5-1)の含窒素6員複素環である。]

【0046】

【化17】

一般式(A5-1)



20

【0047】

[式中、 $Y^1 \sim Y^5$ はそれぞれ独立に $=N-$ 又は $=C(R^3)-$ を表し、 $R^3$ は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$ のうち少なくとも1つは $=N-$ を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$ が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$ は互いに縮合して環を形成しても良い。]

30

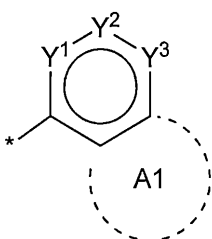
【0048】

6. 前記一般式(A5-1)は、下記一般式(A5-3)又は下記一般式(A5-4)で表されることを特徴とする前記1~5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0049】

【化18】

一般式(A5-3)



40

【0050】

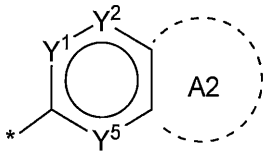
[式中、 $Y^1 \sim Y^3$ はそれぞれ独立に $=N-$ 又は $=C(R^3)-$ を表し、 $R^3$ は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^3$ のうち少なくとも1つは $=N-$ を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。A1は、6員のアリール、6員のヘテロアリール又は5員のヘテロアリールを形成する残基を表す。]

50

【 0 0 5 1 】

【 化 1 9 】

一般式(A5-4)



【 0 0 5 2 】

10

〔式中、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式(A5)との連結位置を表す。A2は、6員のアリール、6員のヘテロアリール又は5員のヘテロアリールを形成する残基を表す。〕

【 0 0 5 3 】

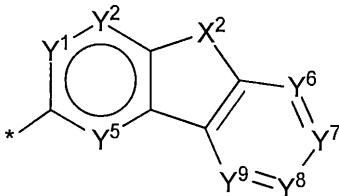
7. 前記一般式(A5-1)は、前記一般式(A5-4)で表され、前記一般式(A5-4)は、下記一般式(A5-5)又は下記一般式(A5-6)で表されることを特徴とする前記6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 0 0 5 4 】

【 化 2 0 】

20

一般式(A5-5)



【 0 0 5 5 】

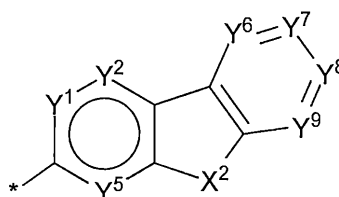
30

〔式中、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5 \sim Y^9$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式(A5)との連結位置を表す。 $X^2$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^2-$ 、 $-CR^3R^4-$  のいずれかを表す。 $R^2$ 、 $R^4$  は、それぞれ前記した  $R^2$ 、 $R^4$  と同義である。〕

【 0 0 5 6 】

【 化 2 1 】

一般式(A5-6)



40

【 0 0 5 7 】

〔式中、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5 \sim Y^9$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式(A5)との連結位置を表す。 $X^2$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^2-$ 、 $-CR^3R^4-$  のいずれかを表す。 $R^2$ 、 $R^4$  は、それぞれ前記した  $R^2$ 、 $R^4$  と同義である。〕

50

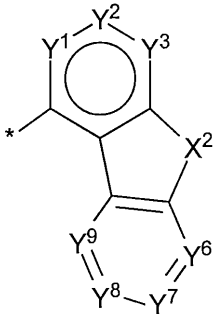
## 【 0 0 5 8 】

8 . 前記一般式 ( A 5 - 1 ) は、前記一般式 ( A 5 - 3 ) で表され、前記一般式 ( A 5 - 3 ) は、下記一般式 ( A 5 - 7 ) 又は下記一般式 ( A 5 - 8 ) で表されることを特徴とする前記 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【 0 0 5 9 】

## 【 化 2 2 】

一般式(A5-7)



10

## 【 0 0 6 0 】

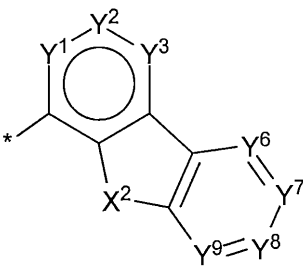
[ 式中、 $Y^1 \sim Y^3$ 、 $Y^6 \sim Y^9$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^3$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 ( A 5 ) との連結位置を表す。 $X^2$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^2-$ 、 $-CR^3R^4-$  のいずれかを表す。 $R^2$ 、 $R^4$  は、それぞれ前記した  $R^2$ 、 $R^4$  と同義である。]

20

## 【 0 0 6 1 】

## 【 化 2 3 】

一般式(A5-8)



30

## 【 0 0 6 2 】

[ 式中、 $Y^1 \sim Y^3$ 、 $Y^6 \sim Y^9$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^3$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 ( A 5 ) との連結位置を表す。 $X^2$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^2-$ 、 $-CR^3R^4-$  のいずれかを表す。 $R^2$ 、 $R^4$  は、それぞれ前記した  $R^2$ 、 $R^4$  と同義である。]

## 【 0 0 6 3 】

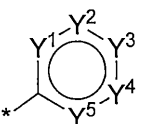
9 . 前記含窒素 6 員複素環が、下記一般式 ( A 5 - 1 ) の含窒素 6 員複素環であることを特徴とする前記 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

## 【 0 0 6 4 】

## 【 化 2 4 】

一般式 ( A 5 - 1 )



[ 式中、 $Y^3$  は  $=N-$  を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^4$ 、 $Y^5$  は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、\* は一般式 ( A 5 ) との連結位置を表す。 $Y^1$  と  $Y^2$ 、又は

50

、 $Y^4$  と  $Y^5$  は互いに縮合して環を形成しても良い。]

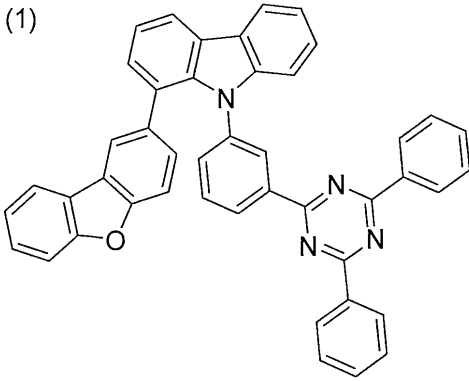
【0065】

10. 前記一般式(A1)~(A5)で表される化合物が下記化合物(1)~(14)で表されることを特徴とする前記1~9のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

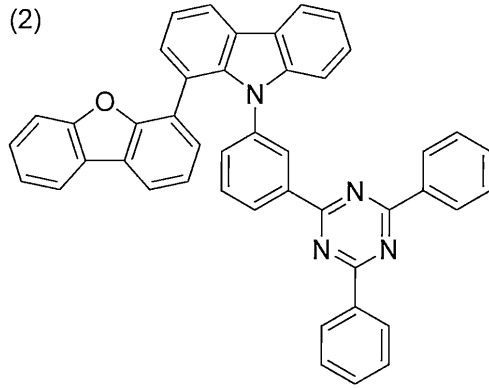
【0066】

【化25】

(1)



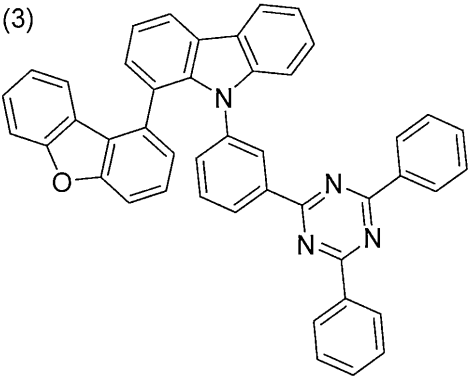
(2)



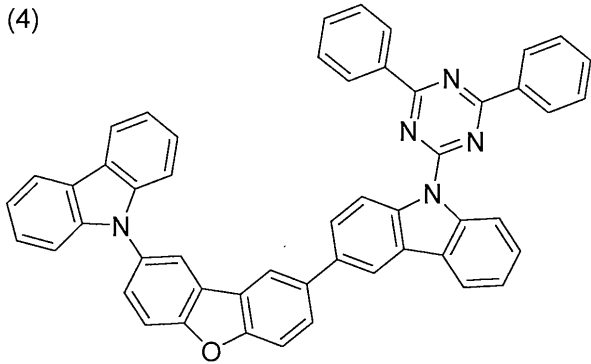
10

20

(3)

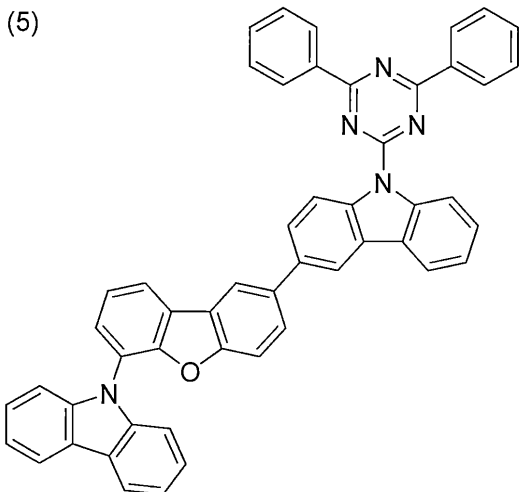


(4)

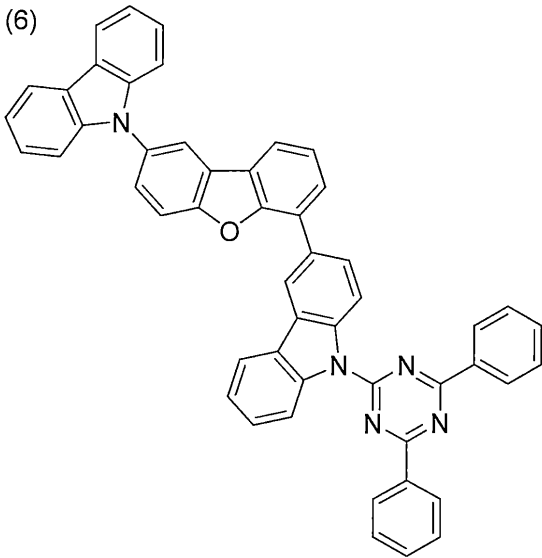


30

(5)



(6)



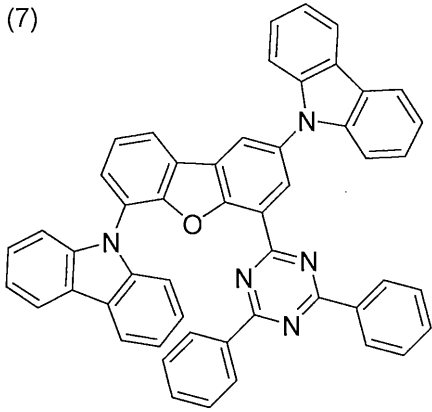
40

【0067】

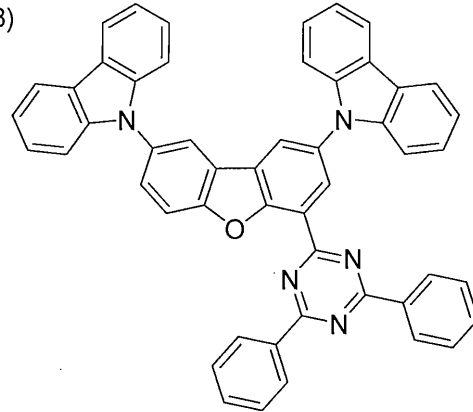


【化 2 6】

(7)

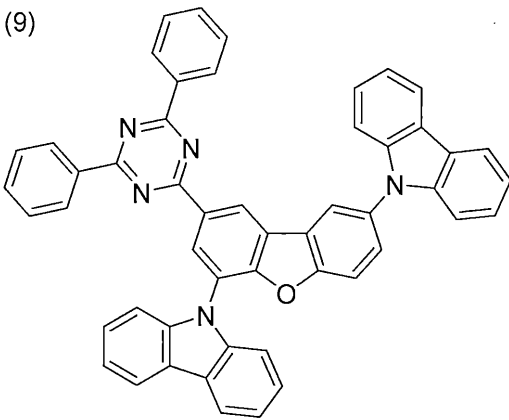


(8)

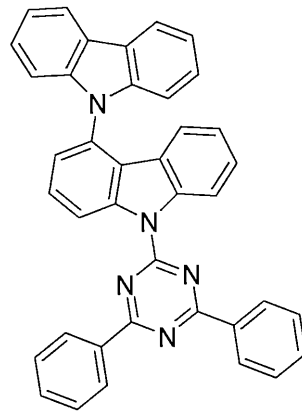


10

(9)

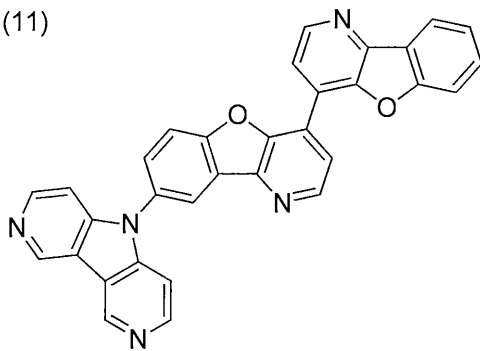


(10)

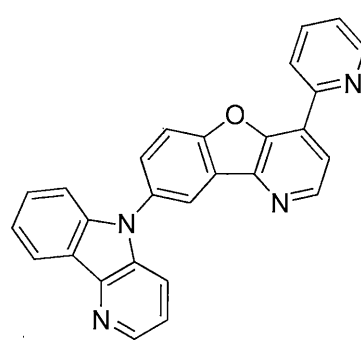


20

(11)

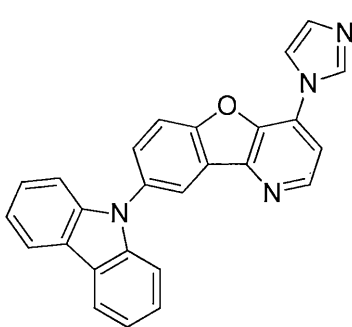


(12)

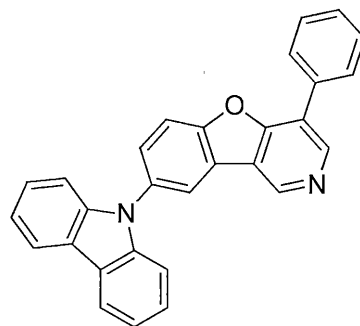


30

(13)



(14)



40

【 0 0 6 8】

1 1 . 前記発光層が前記一般式 ( A 1 ) ~ ( A 5 ) で表される化合物のうち少なくとも

50

1つを含有することを特徴とする前記1～10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0069】

12．前記発光層がリン光発光性ドーパントを含有することを特徴とする前記1～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0070】

13．前記リン光発光性ドーパントがIr錯体であることを特徴とする前記12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0071】

14．前記有機層が電子輸送層を含み、該電子輸送層が前記一般式(A1)～(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを含有することを特徴とする前記1～13のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0072】

15．前記1～14のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子をウェットプロセスで作製す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の製造方法。

【0073】

16．前記1～14のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする表示装置。

【0074】

17．前記1～14のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする照明装置。

【発明の効果】

【0075】

本発明の上記手段により、発光効率が高く、高温下で保存した後においても発光強度の経時変化が小さく、更に高温下での発光寿命が長い有機EL素子を提供することができる。更には、ウェットプロセスによる生産適性を向上させることができる。また、当該有機EL素子が具備された表示装置及び照明装置を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0076】

【図1】本発明の表示装置の構成の一例を示した概略斜視図である。

【図2】図1に示す表示部Aの構成の一例を示した概略斜視図である。

【図3】本発明の有機EL素子を用いた照明装置の一例を示す概略斜視図である。

【図4】本発明の有機EL素子を用いた照明装置の一例を示す概略断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0077】

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

以下に本発明を実施するための形態について詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0078】

《有機エレクトロルミネッセンス素子》

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、少なくとも1対の陽極と陰極により挟まれた有機層を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が発光層を含む少なくとも1層からなり、該有機層のうち少なくとも1層が下記一般式(A1)～(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを含有することを特徴とする。

【0079】

[一般式(A1)～(A3)]

一般式(A1)～(A3)で表される化合物は、以下のとおりである。

10

20

30

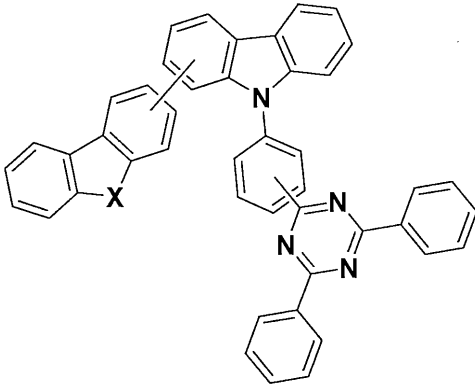
40

50

【0080】

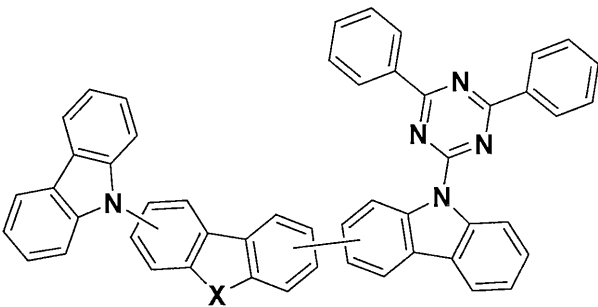
【化27】

一般式(A1)



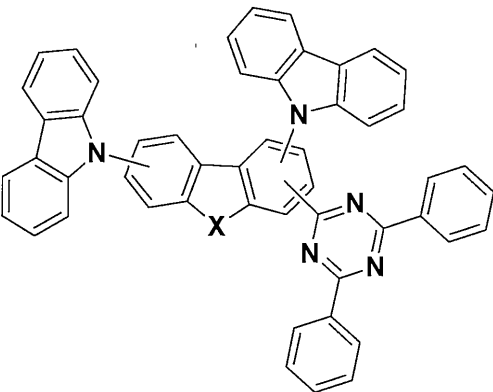
10

一般式(A2)



20

一般式(A3)



30

【0081】

一般式(A1)~(A3)中、Xは酸素原子又は硫黄原子を表す。好ましくは酸素原子である。

【0082】

[一般式(A4)]

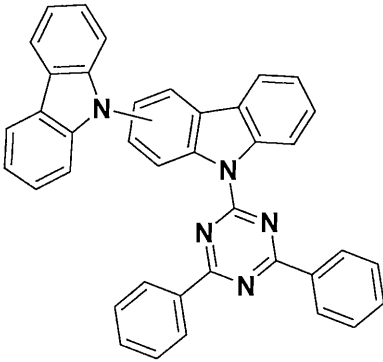
一般式(A4)で表される化合物は、以下のとおりである。

40

【0083】

## 【化 28】

## 一般式 (A4)



10

## 【0084】

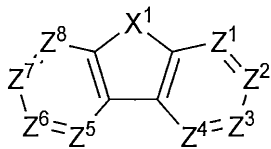
## [一般式 (A5)]

一般式 (A5) で表される化合物は、以下のとおりである。(以下の条件で表される一般式 (A5) を、適宜、一般式 (A5 - a) という)。

## 【0085】

## 【化 29】

## 一般式 (A5)



20

## 【0086】

一般式 (A5) 中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表す。好ましくは酸素原子である。

## 【0087】

一般式 (A5) 中、 $Z^1 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^4$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表す。但し、 $Z^4$  が  $=N-$  の場合、 $Z^1$  は  $=N-$  又は  $=C(R^2)-$  を表し、 $R^2$  は下記一般式 (A5 - 1) の含窒素6員複素環又は下記一般式 (A5 - 2) の含窒素5員環を表す。また、 $Z^4$  が  $=C(R^1)-$  の場合、少なくとも  $Z^3$  は  $=N-$  を表す。

30

## 【0088】

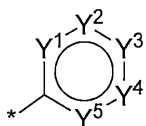
## [一般式 (A5 - 1)]

一般式 (A5 - 1) で表される化合物は、以下のとおりである。

## 【0089】

## 【化 30】

## 一般式 (A5 - 1)



40

## 【0090】

一般式 (A5 - 1) 中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。特に、 $Y^1$  又は  $Y^4$  が  $=N-$  を表す場合に、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成することが好ましい。

## 【0091】

50

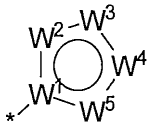
[ 一般式 ( A 5 - 2 ) ]

一般式 ( A 5 - 2 ) で表される化合物は、以下のとおりである。

【 0 0 9 2 】

【 化 3 1 】

一般式 ( A 5 - 2 )



【 0 0 9 3 】

一般式 ( A 5 - 2 ) 中、 $W^1$  は N 又は  $=C-$  を表し、 $W^2 \sim W^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^4)-$  を表し、 $R^4$  は水素原子又は置換基を表し、 $W^1 \sim W^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 ( A 5 ) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^4)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^4$  は互いに縮合して環を形成しても良い。

【 0 0 9 4 】

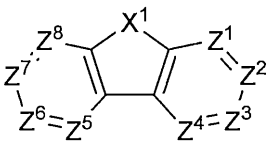
また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、前記有機層のうち少なくとも1層が、前記一般式 ( A 1 ) ~ ( A 4 ) 及び下記一般式 ( A 5 ) ( 以下の条件で表される一般式 ( A 5 ) を、適宜、一般式 ( A 5 - b ) という ) で表される化合物のうち少なくとも1つを含有するものであっても良い。すなわち、一般式 ( A 5 - a ) で表される化合物の代わりに一般式 ( A 5 - b ) で表される化合物を含有するものであっても良い。また、一般式 ( A 5 - a ) で表される化合物とともに、一般式 ( A 5 - b ) で表される化合物を含有するものであっても良い。

また、一般式 ( A 5 - a ) で表される化合物の条件 ( 例えば、 $Z^1 \sim Z^8$  等 ) が、一般式 ( A 5 - b ) で表される化合物の条件に更に限定されたものであってもよい。

【 0 0 9 5 】

【 化 3 2 】

一般式 ( A 5 )



【 0 0 9 6 】

一般式 ( A 5 ) 中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表す。好ましくは酸素原子である。

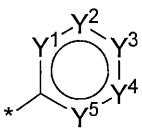
【 0 0 9 7 】

一般式 ( A 5 ) 中、 $Z^1 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^4$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、残りの  $Z^1 \sim Z^4$  は  $=C(R^1)$  であり、前記残りの  $Z^1 \sim Z^4$  における  $R^1$  のうちの少なくとも1つは、下記一般式 ( A 5 - 1 ) の含窒素6員複素環である。

【 0 0 9 8 】

【 化 3 3 】

一般式 ( A 5 - 1 )



【 0 0 9 9 】

一般式 ( A 5 - 1 ) 中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも1つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 ( A 5 ) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に2個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。特に、 $Y^1$  又は  $Y^4$  が  $=N-$  を

10

20

30

40

50

表す場合に、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に 2 個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成することが好ましい。

【0100】

また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、前記有機層のうち少なくとも 1 層が、前記一般式 (A1) ~ (A4) 及び下記一般式 (A5) (以下の条件で表される一般式 (A5) を、適宜、一般式 (A5-c) という) で表される化合物のうち少なくとも 1 つを含有するものであっても良い。すなわち、一般式 (A5-a) で表される化合物の代わりに一般式 (A5-c) で表される化合物を含有するものであっても良い。また、一般式 (A5-a) で表される化合物とともに、一般式 (A5-c) で表される化合物を含有するものであっても良い。

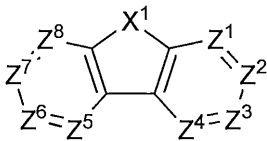
10

また、一般式 (A5-a) 又は一般式 (A5-b) で表される化合物の条件 (例えば、 $Z^1 \sim Z^8$  等) が、一般式 (A5-c) で表される化合物の条件に更に限定されたものであってもよい。

【0101】

【化34】

一般式 (A5)



20

【0102】

一般式 (A5) 中、 $X^1$  は酸素原子又は硫黄原子を表す。好ましくは酸素原子である。

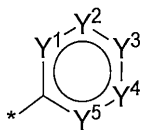
【0103】

一般式 (A5) 中、 $Z^1 \sim Z^3$  は  $=C(R^1)-$  を表し、 $Z^4$  は  $=N-$  を表し、 $Z^5 \sim Z^8$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^1)-$  を表し、 $R^1$  は水素原子又は置換基を表し、 $Z^1 \sim Z^3$  の  $R^1$  うち少なくとも 1 つは下記一般式 (A5-1) の含窒素 6 員複素環である。

【0104】

【化35】

一般式 (A5-1)



30

【0105】

一般式 (A5-1) 中、 $Y^1 \sim Y^5$  はそれぞれ独立に  $=N-$  又は  $=C(R^3)-$  を表し、 $R^3$  は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^5$  のうち少なくとも 1 つは  $=N-$  を表し、\* は一般式 (A5) との連結位置を表す。但し、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に 2 個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成しても良い。特に、 $Y^1$  又は  $Y^4$  が  $=N-$  を表す場合に、 $=C(R^3)-$  が隣接する位置に 2 個連続する場合、 $R^3$  は互いに縮合して環を形成することが好ましい。

40

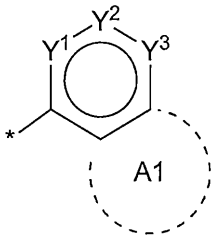
【0106】

また、前記一般式 (A5-1) は、下記一般式 (A5-3) 又は下記一般式 (A5-4) で表されるものであっても良い。

【0107】

## 【化36】

## 一般式(A5-3)



## 【0108】

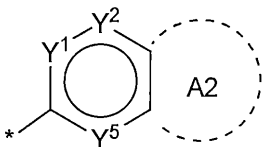
一般式(A5-3)中、 $Y^1 \sim Y^3$ はそれぞれ独立に $=N-$ 又は $=C(R^3)-$ を表し、 $R^3$ は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^3$ のうち少なくとも1つは $=N-$ を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。A1は、6員のアリール、6員のヘテロアリール又は5員のヘテロアリールを形成する残基を表す。

10

## 【0109】

## 【化37】

## 一般式(A5-4)



20

## 【0110】

一般式(A5-4)中、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$ はそれぞれ独立に $=N-$ 又は $=C(R^3)-$ を表し、 $R^3$ は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$ のうち少なくとも1つは $=N-$ を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。A2は、6員のアリール、6員のヘテロアリール又は5員のヘテロアリールを形成する残基を表す。

## 【0111】

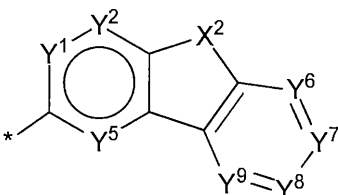
また、前記一般式(A5-1)は、前記一般式(A5-4)で表され、前記一般式(A5-4)は、下記一般式(A5-5)又は下記一般式(A5-6)で表されるものであっても良い。

30

## 【0112】

## 【化38】

## 一般式(A5-5)



40

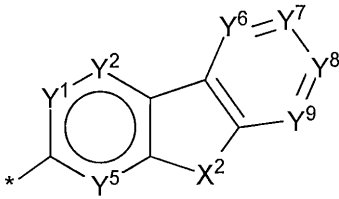
## 【0113】

一般式(A5-5)中、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5 \sim Y^9$ はそれぞれ独立に $=N-$ 又は $=C(R^3)-$ を表し、 $R^3$ は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$ のうち少なくとも1つは $=N-$ を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。 $X^2$ は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^2-$ 、 $-CR^3R^4-$ のいずれかを表す。 $R^2$ 、 $R^4$ は、それぞれ前記した $R^2$ 、 $R^4$ と同義である。

## 【0114】

## 【化39】

## 一般式(A5-6)



## 【0115】

10

一般式(A5-6)中、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5 \sim Y^9$ はそれぞれ独立に=N-又は=C( $R^3$ )-を表し、 $R^3$ は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^5$ のうち少なくとも1つは=N-を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。 $X^2$ は、-O-、-S-、-NR<sup>2</sup>-、-CR<sup>3</sup>R<sup>4</sup>-のいずれかを表す。 $R^2$ 、 $R^4$ は、それぞれ前記した $R^2$ 、 $R^4$ と同義である。

## 【0116】

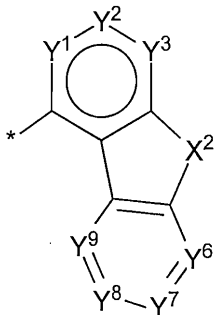
前記一般式(A5-1)は、前記一般式(A5-3)で表され、前記一般式(A5-3)は、下記一般式(A5-7)又は下記一般式(A5-8)で表されるものであっても良い。

## 【0117】

20

## 【化40】

## 一般式(A5-7)



30

## 【0118】

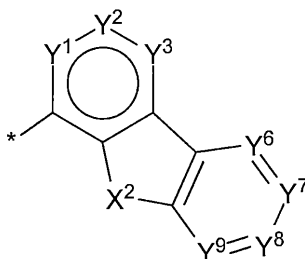
一般式(A5-7)中、 $Y^1 \sim Y^3$ 、 $Y^6 \sim Y^9$ はそれぞれ独立に=N-又は=C( $R^3$ )-を表し、 $R^3$ は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^3$ のうち少なくとも1つは=N-を表し、\*は一般式(A5)との連結位置を表す。 $X^2$ は、-O-、-S-、-NR<sup>2</sup>-、-CR<sup>3</sup>R<sup>4</sup>-のいずれかを表す。 $R^2$ 、 $R^4$ は、それぞれ前記した $R^2$ 、 $R^4$ と同義である。

## 【0119】

## 【化41】

40

## 一般式(A5-8)



## 【0120】

50



一般式 (A 5 - 8) 中、 $Y^1 \sim Y^3$ 、 $Y^6 \sim Y^9$  はそれぞれ独立に = N - 又は = C (R<sup>3</sup>) - を表し、R<sup>3</sup> は水素原子又は置換基を表し、 $Y^1 \sim Y^3$  のうち少なくとも1つは = N - を表し、\* は一般式 (A 5) との連結位置を表す。X<sup>2</sup> は、- O - , - S - , - NR<sup>2</sup> - , - CR<sup>3</sup>R<sup>4</sup> - のいずれかを表す。R<sup>2</sup>、R<sup>4</sup> は、それぞれ前記した R<sup>2</sup>、R<sup>4</sup> と同義である。

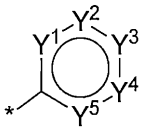
## 【0121】

前記した一般式 (A 5) (一般式 (A 5 - a)、一般式 (A 5 - b)、及び、一般式 (A 5 - c)) における含窒素6員複素環は、下記一般式 (A 5 - 1) の含窒素6員複素環であっても良い。

## 【0122】

## 【化42】

## 一般式 (A 5 - 1)



## 【0123】

一般式 (A 5 - 1) 中、 $Y^3$  は = N - を表し、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^4$ 、 $Y^5$  は = C (R<sup>3</sup>) - を表し、R<sup>3</sup> は水素原子又は置換基を表し、\* は一般式 (A 5) との連結位置を表す。 $Y^1$  と  $Y^2$ 、又は、 $Y^4$  と  $Y^5$  は互いに縮合して環を形成しても良い。

## 【0124】

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

10

20

30

40

50

例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等)、アシル基(例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等)、アシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等)、アミド基(例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等)、カルバモイル基(例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基、ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等)、スルフィニル基(例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリールスルホニル基又はヘテロアリールスルホニル基(例えば、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、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(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)、ホスホノ基等が挙げられる。但し、これらの置換基に限定されるものではない。

10

20

30

40

**【0125】**

これらの置換基は、上記の置換基によって更に置換されていてもよく、更に、これらの置換基は複数互いに結合して環構造を形成してもよい。

**【0126】**

$R^1$ 、 $R^3$  及び  $R^4$  で表される置換基の内、好ましいものはアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基であり、特に芳香族炭化水素基、芳香族複素環基が好ましい。

**【0127】**

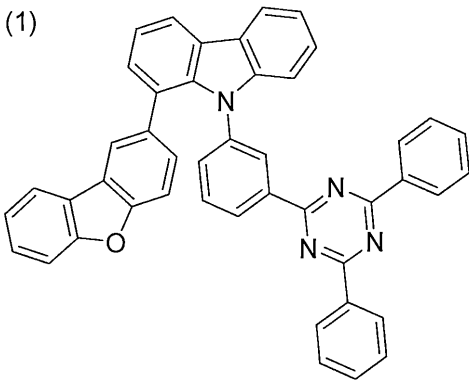
一般式(A1)~(A5)で表される化合物の具体例を下記に示すが、これらに限定されない。なお、これらの化合物は、本明細書を見た当業者であれば、従来公知の方法に従って合成することができる。

50

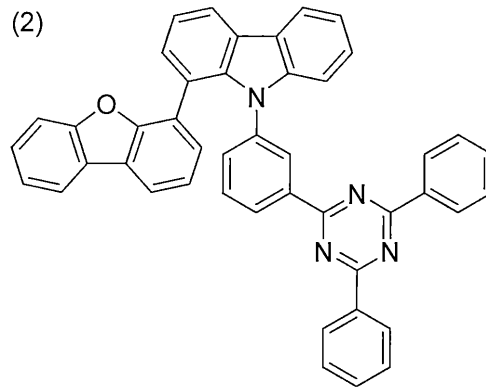
【 0 1 2 8 】

【 化 4 3 】

(1)

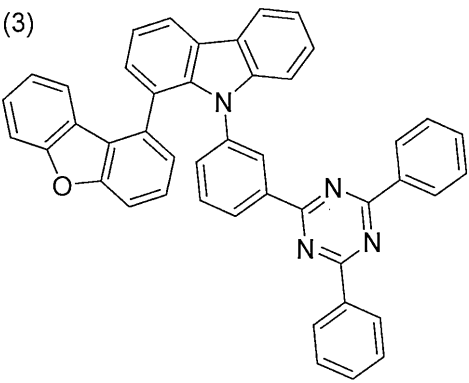


(2)

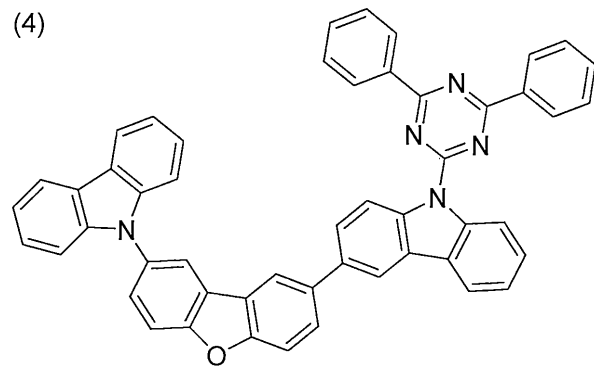


10

(3)

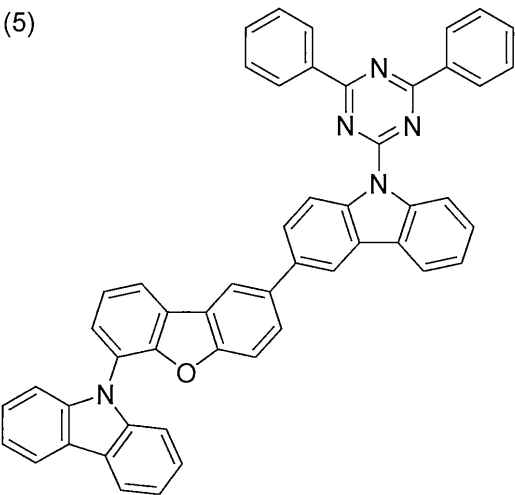


(4)

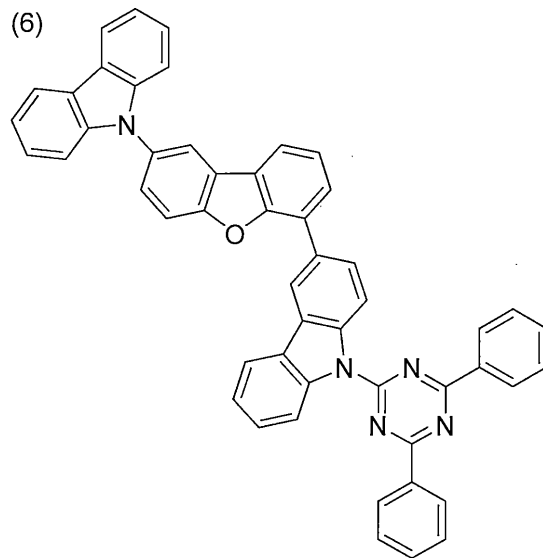


20

(5)



(6)



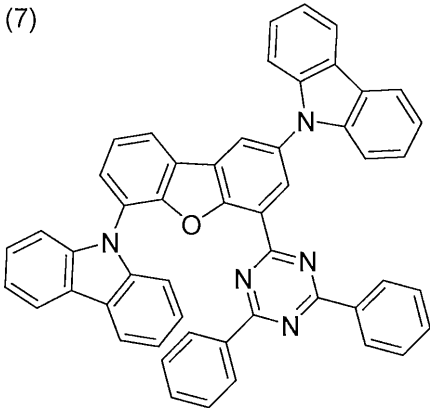
30

40

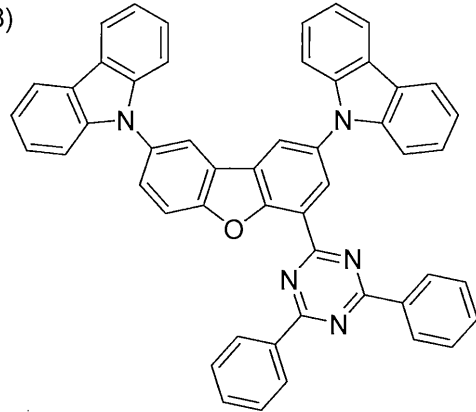
【 0 1 2 9 】

【化 4 4】

(7)

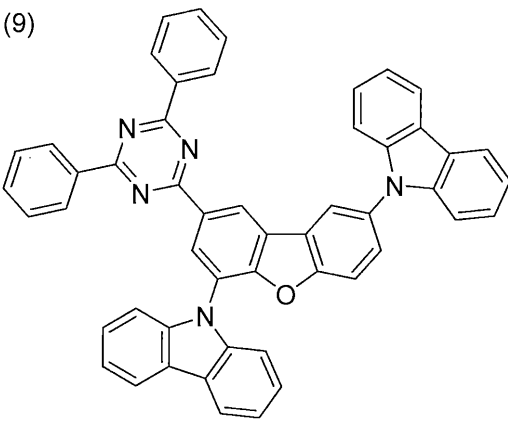


(8)

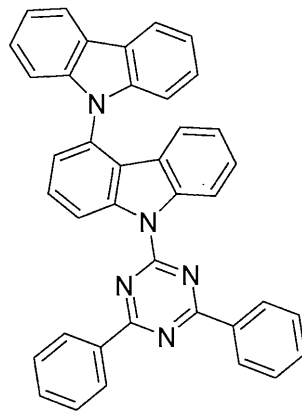


10

(9)

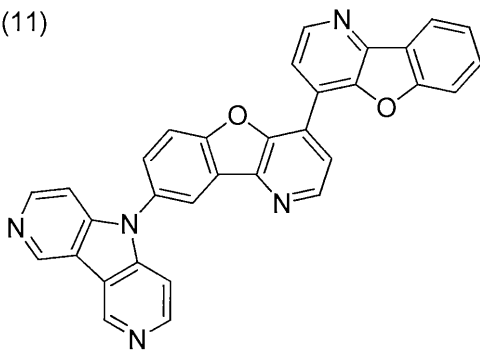


(10)

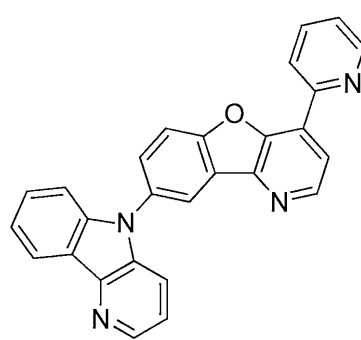


20

(11)

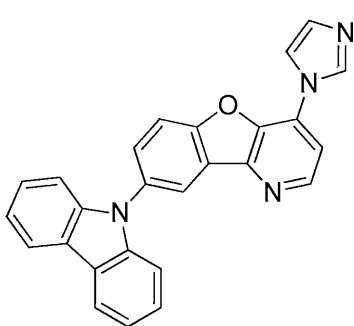


(12)

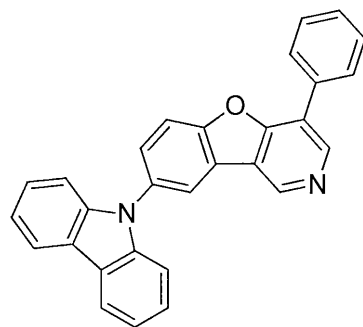


30

(13)



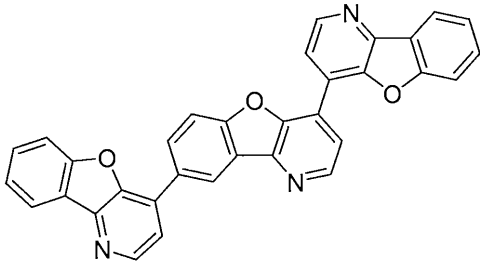
(14)



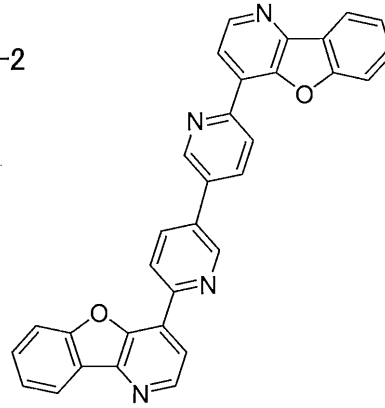
40

【化 4 5】

A5-1

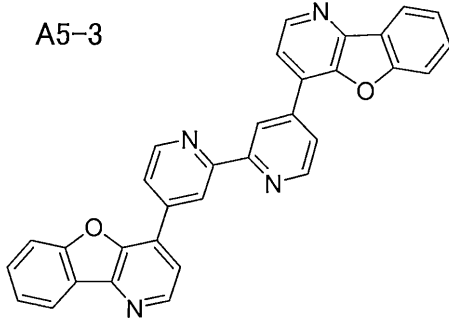


A5-2

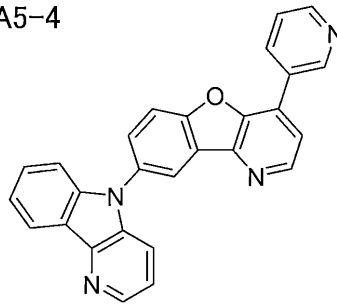


10

A5-3

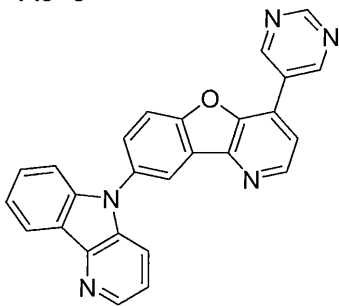


A5-4

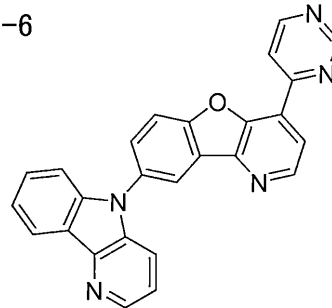


20

A5-5

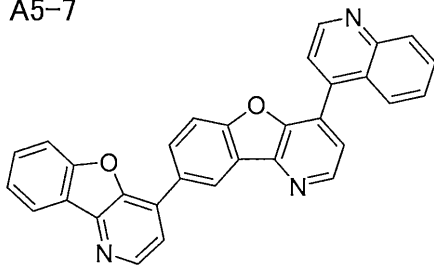


A5-6

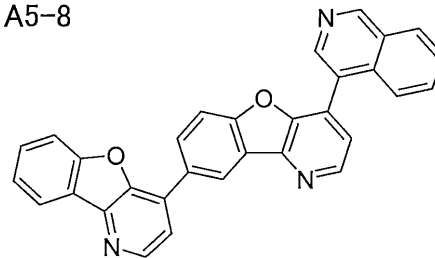


30

A5-7

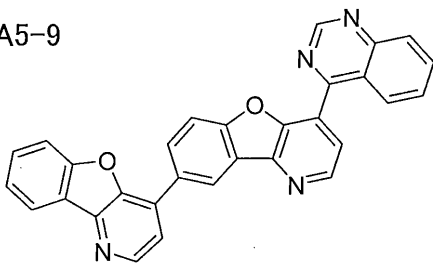


A5-8



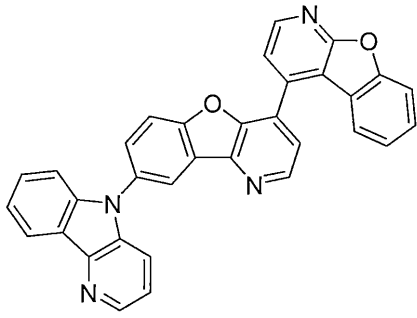
40

A5-9

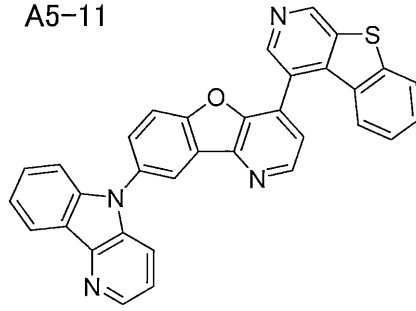


【 0 1 3 1】

【化 4 6】  
A5-10

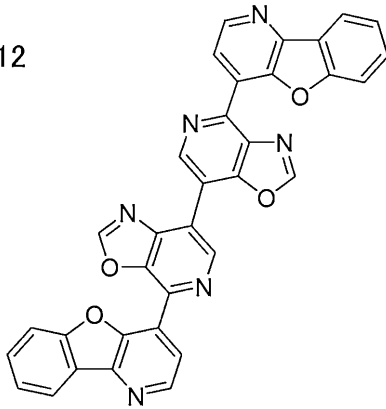


A5-11

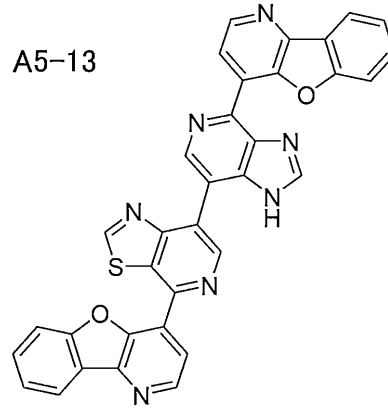


10

A5-12

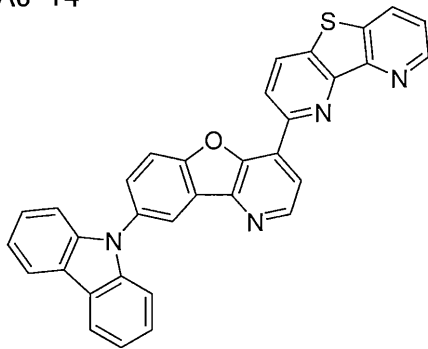


A5-13

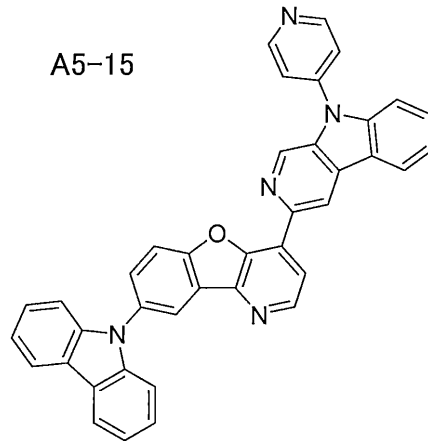


20

A5-14

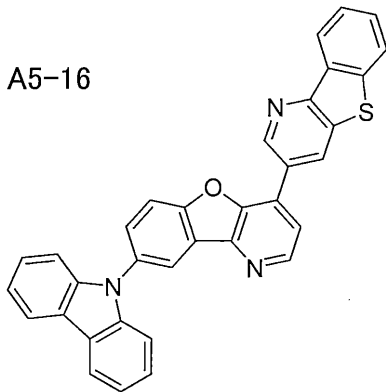


A5-15

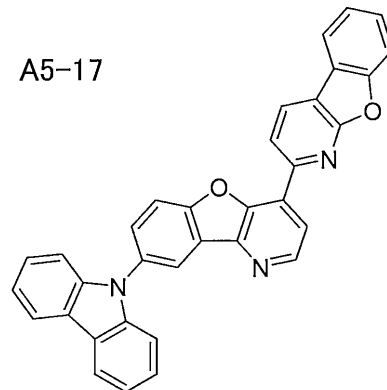


30

A5-16



A5-17

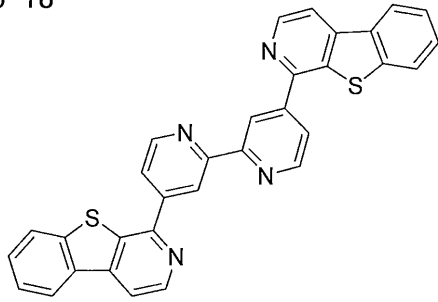


40

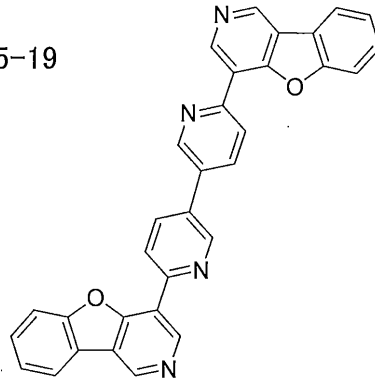
【 0 1 3 2 】

【化 4 7】

A5-18

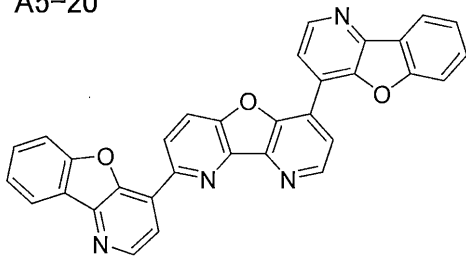


A5-19

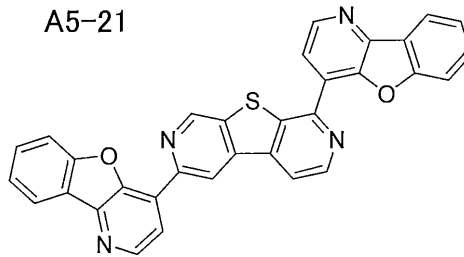


10

A5-20

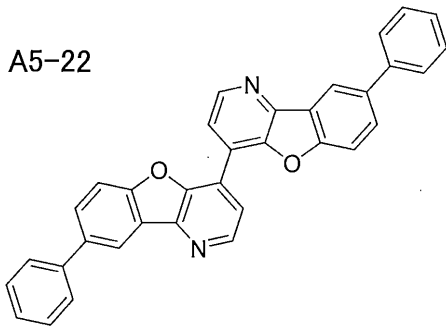


A5-21

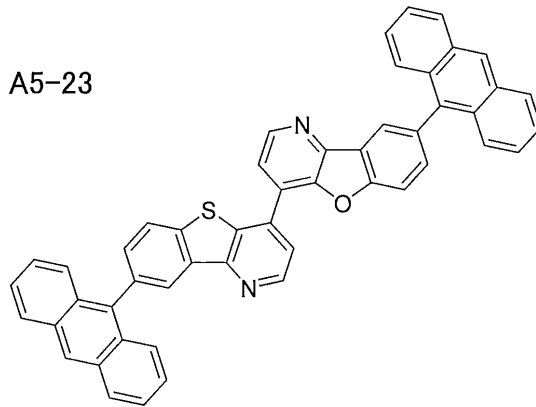


20

A5-22

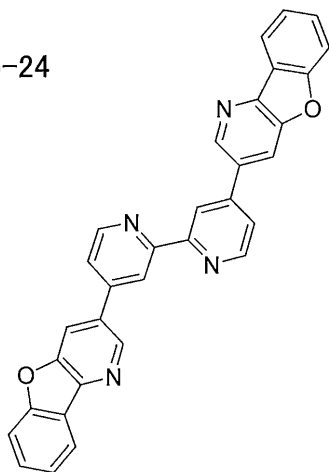


A5-23

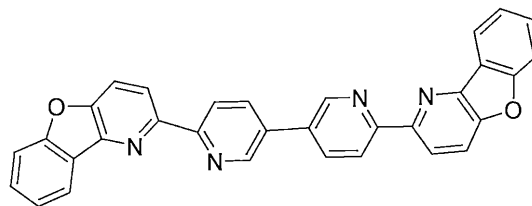


30

A5-24



A5-25

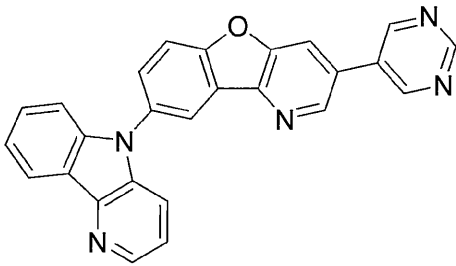


40

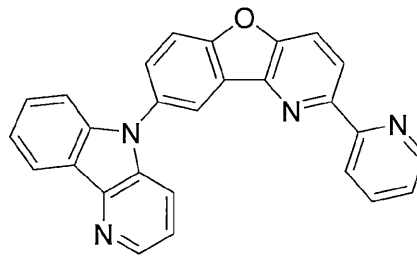
【 0 1 3 3 】

## 【化 4 8】

A5-26

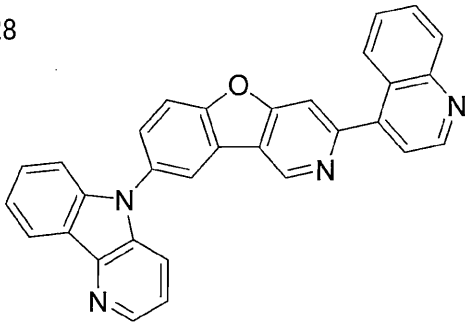


A5-27

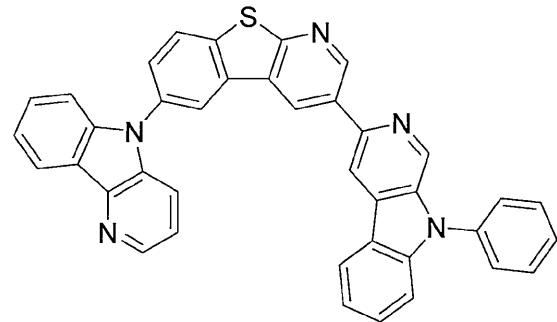


10

A5-28

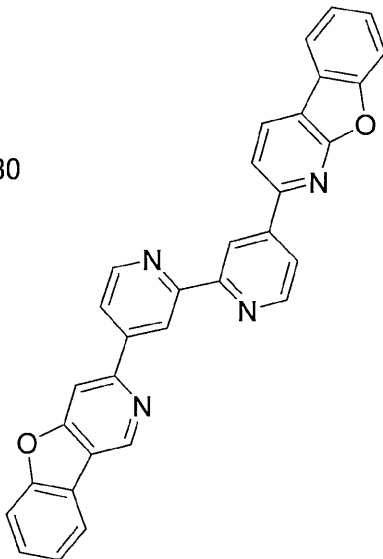


A5-29

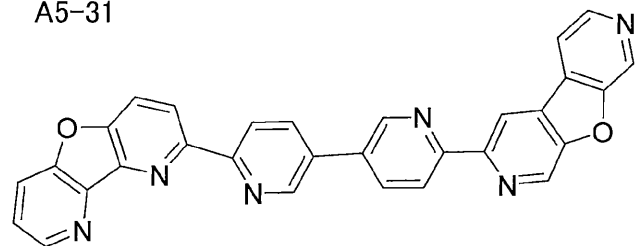


20

A5-30



A5-31



30

## 【0134】

本発明においては、発光層が一般式(A1)~(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを含有することが好ましく、一般式(A1)~(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つをホスト化合物として含有することが好ましい。なお、発光層がリン光発光性ドーパントを含有することが好ましい。また、リン光発光性ドーパントがIr錯体であることが好ましい。また、発光層が、一般式(A1)~(A5)で表される化合物とは異なる構造を有するホスト化合物(すなわち、公知のホスト化合物)を更に含有することが好ましい。発光層の詳しい構成、リン光発光性ドーパント、及一般式(A1)~(A5)で表される化合物とは異なる構造を有するホスト化合物については後述する。

40

## 【0135】

また、本発明においては、有機層が電子輸送層を含み、該電子輸送層が一般式(A1)~(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを含有することが好ましい。電子輸送層が一般式(A1)~(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを含有することで、発光効率が高く、高温下で保存した後においても発光強度の経時変化が小さく、更に高温下での発光寿命が長いという性能を有することに加え、低電圧で駆動し、且つ駆動時の

50



電圧上昇が小さい有機EL素子とすることができる。

【0136】

すなわち、本発明においては、発光層と電子輸送層のいずれにも、一般式(A1)～(A5)で表される化合物のうち少なくとも1つを含有することがより好ましい。

【0137】

本発明の一般式(A5)(一般式(A5-a)、一般式(A5-b)、及び、一般式(A5-c))で表されるアザジベンゾフラン誘導体は、特に電子を輸送する層に用いられることが好ましい。つまり、発光層と陰極の間に使用することが好ましく、具体的には、電子輸送層や電子注入層等として使用される。

アザジベンゾフランは、平面が広く電子輸送に好適なジベンゾフラン骨格に、窒素原子を導入した化合物であり、電気陰性度の高い窒素原子導入により、(1)LUMO準位が深くなる、(2)窒素原子上のn電子と電子が相互作用し、分子間ホッピングが強くなる、という利点がある。更に、一般式(A5-1)で表される芳香族複素環を自由間回転のできる単結合で置換した化合物は、アザジベンゾフラン骨格と芳香族複素環にLUMO分布が拡大するため、(1)更なるLUMO準位の深化を起こす、(2)高温保存時でも、分子間ホッピングを維持できる、という効果をもたらす。これは、自由間回転のできる単結合で、アザジベンゾフラン骨格と芳香族複素環を繋げることで、少々膜質変動が起きても、電子ホッピングを維持できるためである。これにより、駆動電圧の低下と高温保存時でも、寿命低下や駆動電圧上昇が起こらない。

【0138】

《有機EL素子の構成層》

本発明の有機EL素子における代表的な素子構成としては、以下の構成を上げることができるが、これらに限定されるものではない。

【0139】

- (1) 陽極 / 発光層 / 陰極
- (2) 陽極 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極
- (3) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 陰極
- (4) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極
- (5) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極
- (6) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極
- (7) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / (電子阻止層 / ) 発光層 / (正孔阻止層 / ) 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

上記の中で(7)の構成が好ましく用いられるが、これに限定されるものではない。

【0140】

本発明に係る発光層は、単層又は複数層で構成されており、発光層が複数の場合は各発光層の間に非発光性の中間層を設けてもよい。

【0141】

必要に応じて、発光層と陰極との間に正孔阻止層(正孔障壁層ともいう)や電子注入層(陰極バッファ層ともいう)を設けてもよく、また、発光層と陽極との間に電子阻止層(電子障壁層ともいう)や正孔注入層(陽極バッファ層ともいう)を設けてもよい。

【0142】

本発明に用いられる電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する層であり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。また、複数層で構成されていてもよい。

【0143】

本発明に用いられる正孔輸送層とは、正孔を輸送する機能を有する層であり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。また、複数層で構成されていてもよい。

【0144】

上記の代表的な素子構成において、陽極と陰極を除いた層を「有機層」ともいう。

## 【0145】

(タンデム構造)

また、本発明の有機EL素子は、少なくとも1層の発光層を含む発光ユニットを複数積層した、いわゆるタンデム構造の素子であってもよい。

## 【0146】

タンデム構造の代表的な素子構成としては、例えば以下の構成を挙げることができる。

## 【0147】

陽極 / 第1発光ユニット / 第2発光ユニット / 第3発光ユニット / 陰極

陽極 / 第1発光ユニット / 中間層 / 第2発光ユニット / 中間層 / 第3発光ユニット / 陰極

ここで、上記第1発光ユニット、第2発光ユニット及び第3発光ユニットは全て同じであっても、異なってもよい。また二つの発光ユニットが同じであり、残る一つが異なってもよい。

## 【0148】

また、第3発光ユニットはなくてもよく、一方で第3発光ユニットと電極の間に更に発光ユニットや中間層を設けてもよい。

## 【0149】

複数の発光ユニットは直接積層されていても、中間層を介して積層されていてもよく、中間層は、一般的に中間電極、中間導電層、電荷発生層、電子引抜層、接続層、中間絶縁層とも呼ばれ、陽極側の隣接層に電子を、陰極側の隣接層に正孔を供給する機能を持った層であれば、公知の材料及び構成を用いることができる。

## 【0150】

中間層に用いられる材料としては、例えば、ITO(インジウム・スズ酸化物)、IZO(インジウム・亜鉛酸化物)、 $ZnO_2$ 、TiN、ZrN、HfN、 $TiO_x$ 、 $VO_x$ 、CuI、InN、GaN、 $CuAlO_2$ 、 $CuGaO_2$ 、 $SrCu_2O_2$ 、 $LaB_6$ 、 $RuO_2$ 、Al等の導電性無機化合物層や、Au/ $Bi_2O_3$ 等の2層膜や、 $SnO_2/Ag/SnO_2$ 、 $ZnO/Ag/ZnO$ 、 $Bi_2O_3/Au/Bi_2O_3$ 、 $TiO_2/TiN/TiO_2$ 、 $TiO_2/ZrN/TiO_2$ 等の多層膜、また $C_{60}$ 等のフラーレン類、オリゴチオフェン等の導電性有機物層、金属フタロシアニン類、無金属フタロシアニン類、金属ポルフィリン類、無金属ポルフィリン類等の導電性有機化合物層等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

## 【0151】

発光ユニット内の好ましい構成としては、例えば上記の代表的な素子構成で挙げた(1)~(7)の構成から、陽極と陰極を除いたもの等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

## 【0152】

タンデム型有機EL素子の具体例としては、例えば、米国特許第6337492号明細書、米国特許第7420203号明細書、米国特許第7473923号明細書、米国特許第6872472号明細書、米国特許第6107734号明細書、米国特許第6337492号明細書、国際公開第2005/009087号、特開2006-228712号公報、特開2006-24791号公報、特開2006-49393号公報、特開2006-49394号公報、特開2006-49396号公報、特開2011-96679号公報、特開2005-340187号公報、特許第4711424号、特許第3496681号、特許第3884564号、特許第4213169号、特開2010-192719号公報、特開2009-076929号公報、特開2008-078414号公報、特開2007-059848号公報、特開2003-272860号公報、特開2003-045676号公報、国際公開第2005/094130号等に記載の素子構成や構成材料等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

## 【0153】

以下、本発明の有機EL素子を構成する各層について説明する。

10

20

30

40

50

## 【0154】

## 《発光層》

本発明に用いられる発光層は、電極又は隣接層から注入されてくる電子及び正孔が再結合し、励起子を経由して発光する場を提供する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても、発光層と隣接層との界面であってもよい。本発明に用いられる発光層は、本発明で規定する要件を満たしていれば、その構成に特に制限はない。

## 【0155】

発光層の層厚の総和は、特に制限はないが、形成する膜の均質性や、発光時に不必要な高電圧を印加するのを防止し、且つ、駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、 $2\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{ m}$ の範囲に調整することが好ましく、より好ましくは $2 \sim 500\text{ nm}$ の範囲に調整され、更に好ましくは $5 \sim 200\text{ nm}$ の範囲に調整される。

10

## 【0156】

また、本発明において個々の発光層の層厚としては、 $2\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$ の範囲に調整することが好ましく、より好ましくは $2 \sim 200\text{ nm}$ の範囲に調整され、更に好ましくは $3 \sim 150\text{ nm}$ の範囲に調整される。

## 【0157】

本発明に用いられる発光層は、発光ドーパント（単にドーパントともいう）と、ホスト化合物（発光ホスト、単にホストともいう）とを含有することが好ましい。

## 【0158】

## (1) 発光ドーパント

20

本発明に用いられる発光ドーパントについて説明する。

## 【0159】

発光ドーパントとしては、リン光発光性ドーパント（リン光ドーパント、リン光性化合物ともいう）と、蛍光発光性ドーパント（蛍光ドーパント、蛍光性化合物ともいう）が好ましく用いられる。本発明においては、少なくとも1層の発光層がリン光発光性ドーパントを含有することが好ましい。

## 【0160】

発光層中の発光ドーパントの濃度については、使用される特定のドーパント及びデバイスの必要条件に基づいて、任意に決定することができ、発光層の層厚方向に対し、均一な濃度で含有されていてもよく、また任意の濃度分布を有していてもよい。

30

## 【0161】

また、本発明に用いられる発光ドーパントは、複数種を併用して用いてもよく、構造の異なるドーパント同士の組み合わせや、蛍光発光性ドーパントとリン光発光性ドーパントとを組み合わせ用いてもよい。これにより、任意の発光色を得ることができる。

## 【0162】

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

## 【0163】

40

本発明においては、1層又は複数層の発光層が、発光色の異なる複数の発光ドーパントを含有し、白色発光を示すことも好ましい。

## 【0164】

白色を示す発光ドーパントの組み合わせについては特に限定はないが、例えば青と橙や、青と緑と赤の組み合わせ等が挙げられる。

## 【0165】

本発明の有機EL素子における白色とは、特に限定はなく、橙色寄りの白色であっても青色寄りの白色であってもよいが、2度視野角正面輝度を前述の方法により測定した際に、 $1000\text{ cd/m}^2$ でのCIE1931表色系における色度が $x = 0.39 \pm 0.09$ 、 $y = 0.38 \pm 0.08$ の領域内にあることが好ましい。

50

## 【0166】

## (1.1) リン光発光性ドーパント

本発明に用いられるリン光発光性ドーパント（以下、「リン光ドーパント」ともいう）について説明する。

## 【0167】

本発明に用いられるリン光ドーパントは、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。

## 【0168】

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、本発明に用いられるリン光ドーパントは、任意の溶媒のいずれかにおいて上記リン光量子収率（0.01以上）が達成されればよい。

## 【0169】

リン光ドーパントの発光は原理としては二種挙げられ、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ドーパントに移動させることでリン光ドーパントからの発光を得るというエネルギー移動型である。もう一つはリン光ドーパントがキャリアトラップとなり、リン光ドーパント上でキャリアの再結合が起こりリン光ドーパントからの発光が得られるというキャリアトラップ型である。いずれの場合においても、リン光ドーパントの励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

## 【0170】

本発明において使用できるリン光ドーパントとしては、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。

## 【0171】

本発明に使用できる公知のリン光ドーパントの具体例としては、以下の文献に記載されている化合物等が挙げられる。

## 【0172】

Nature 395, 151 (1998)、Appl. Phys. Lett. 78, 1622 (2001)、Adv. Mater. 19, 739 (2007)、Chem. Mater. 17, 3532 (2005)、Adv. Mater. 17, 1059 (2005)、国際公開第2009/100991号、国際公開第2008/101842号、国際公開第2003/040257号、米国特許出願公開第2006/835469号明細書、米国特許出願公開第2006/0202194号明細書、米国特許出願公開第2007/0087321号明細書、米国特許出願公開第2005/0244673号明細書、Inorg. Chem. 40, 1704 (2001)、Chem. Mater. 16, 2480 (2004)、Adv. Mater. 16, 2003 (2004)、Angew. Chem. Int. Ed. 2006, 45, 7800、Appl. Phys. Lett. 86, 153505 (2005)、Chem. Lett. 34, 592 (2005)、Chem. Commun. 2906 (2005)、Inorg. Chem. 42, 1248 (2003)、国際公開第2009/050290号、国際公開第2002/015645号、国際公開第2009/000673号、米国特許出願公開第2002/0034656号明細書、米国特許第7332232号明細書、米国特許出願公開第2009/0108737号明細書、米国特許出願公開第2009/0039776号明細書、米国特許第6921915号明細書、米国特許第6687266号明細書、米国特許出願公開第2007/0190359号明細書、米国特許出願公開第2006/0008670号明細書、米国特許出願公開第2009/0165846号明細書、米国特許出願公開第2008/0015355号明細書、米国特許第7250226号明細書、米国特許第7396598号明細書、米国特許出願公開第2006/0263635号明細書、米国特許出願

10

20

30

40

50

公開第2003/0138657号明細書、米国特許出願公開第2003/0152802号明細書、米国特許第7090928号明細書、Angew. Chem. Int. Ed. 47, 1 (2008)、Chem. Mater. 18, 5119 (2006)、Inorg. Chem. 46, 4308 (2007)、Organometallics 23, 3745 (2004)、Appl. Phys. Lett. 74, 1361 (1999)、国際公開第2002/002714号、国際公開第2006/009024号、国際公開第2006/056418号、国際公開第2005/019373号、国際公開第2005/123873号、国際公開第2005/123873号、国際公開第2007/004380号、国際公開第2006/082742号、米国特許出願公開第2006/0251923号明細書、米国特許出願公開第2005/0260441号明細書、米国特許第7393599号明細書、米国特許第7534505号明細書、米国特許第7445855号明細書、米国特許出願公開第2007/0190359号明細書、米国特許出願公開第2008/0297033号明細書、米国特許第7338722号明細書、米国特許出願公開第2002/0134984号明細書、米国特許第7279704号明細書、米国特許出願公開第2006/098120号明細書、米国特許出願公開第2006/103874号明細書、国際公開第2005/076380号、国際公開第2010/032663号、国際公開第2008/140115号、国際公開第2007/052431号、国際公開第2011/134013号、国際公開第2011/157339号、国際公開第2010/086089号、国際公開第2009/113646号、国際公開第2012/020327号、国際公開第2011/051404号、国際公開第2011/004639号、国際公開第2011/073149号、米国特許出願公開第2012/228583号明細書、米国特許出願公開第2012/212126号明細書、特開2012-069737号公報、特開2012-195554号公報、特開2009-114086号公報、特開2003-81988号公報、特開2002-302671号公報、特開2002-363552号公報等である。

10

20

**【0173】**

中でも、好ましいリン光ドーパントとしてはIrを中心金属に有する有機金属錯体が挙げられる。更に好ましくは、金属-炭素結合、金属-窒素結合、金属-酸素結合、金属-硫黄結合の少なくとも一つの配位様式を含む錯体が好ましい。

**【0174】**

(1.2) 蛍光発光性ドーパント

本発明に用いられる蛍光発光性ドーパント(以下、「蛍光ドーパント」ともいう)について説明する。

**【0175】**

本発明に用いられる蛍光ドーパントは、励起一重項からの発光が可能な化合物であり、励起一重項からの発光が観測される限り特に限定されない。

**【0176】**

本発明に用いられる蛍光ドーパントとしては、例えば、アントラセン誘導体、ピレン誘導体、クリセン誘導体、フルオランテン誘導体、ペリレン誘導体、フルオレン誘導体、アリアルアセチレン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、スチリルアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、ホウ素錯体、クマリン誘導体、ピラン誘導体、シアニン誘導体、クロコニウム誘導体、スクアリウム誘導体、オキソベンツアントラセン誘導体、フルオレsein誘導体、ローダミン誘導体、ピリリウム誘導体、ペリレン誘導体、ポリチオフエン誘導体、又は希土類錯体系化合物等が挙げられる。

40

**【0177】**

また、近年では遅延蛍光を利用した発光ドーパントも開発されており、これらを用いてもよい。

**【0178】**

遅延蛍光を利用した発光ドーパントの具体例としては、例えば、国際公開第2011/156793号、特開2011-213643号公報、特開2010-93181号公報

50

等に記載の化合物が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

【0179】

(2) ホスト化合物

本発明に用いられるホスト化合物は、発光層において主に電荷の注入及び輸送を担う化合物であり、有機EL素子においてそれ自体の発光は実質的に観測されない。

【0180】

好ましくは室温(25 )においてリン光発光のリン光量子収率が、0.1未満の化合物であり、更に好ましくはリン光量子収率が0.01未満の化合物である。また、発光層に含有される化合物の中で、その層中での質量比が20%以上であることが好ましい。

【0181】

また、ホスト化合物の励起状態エネルギーは、同一層内に含有される発光ドーパントの励起状態エネルギーよりも高いことが好ましい。

【0182】

ホスト化合物は、単独で用いてもよく、又は複数種併用して用いてもよい。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素子の発光を高効率化することができる。

【0183】

本発明で用いることができるホスト化合物としては、特に制限はなく、従来有機EL素子で用いられる化合物を用いることができる。低分子化合物でも繰り返し単位を有する高分子化合物でもよく、また、ビニル基やエポキシ基のような反応性基を有する化合物でもよい。

【0184】

公知のホスト化合物としては、正孔輸送能又は電子輸送能を有しつつ、且つ、発光の長波長化を防ぎ、更に、有機EL素子を高温駆動時や素子駆動中の発熱に対して安定して動作させる観点から、高いガラス転移温度(Tg)を有することが好ましい。好ましくはTgが90 以上であり、より好ましくは120 以上である。

【0185】

ここで、ガラス転移点(Tg)とは、DSC(Differential Scanning Colorimetry: 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(温度)である。

【0186】

本発明の有機EL素子に用いられる、公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載の化合物等が挙げられるが、これらに限定されない。

【0187】

特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同2002-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-302516号公報、同2002-305083号公報、同2002-305084号公報、同2002-308837号公報、米国特許出願公開第2003/0175553号明細書、米国特許出願公開第2006/0280965号明細書、米国特許出願公開第2005/0112407号明細書、米国特許出願公開第2009/0017330号明細書、米国特許出願公開第2009/0030202号明細書、米国特許

10

20

30

40

50

公開第2005/0238919号明細書、国際公開第2001/039234号、国際出願公開第2009/021126号、国際公開第2008/056746号、国際公開第2004/093207号、国際公開第2005/089025号、国際公開第2007/063796号、国際公開第2007/063754号、国際公開第2004/107822号、国際公開第2005/030900号、国際公開第2006/114966号、国際公開第2009/086028号、国際公開第2009/003898号、国際公開第2012/023947号、特開2008-074939号公報、特開2007-254297号公報、欧州特許第2034538号明細書等である。

【0188】

《電子輸送層》

本発明において電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する材料からなり、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよい。

【0189】

本発明に用いられる電子輸送層の総層厚については特に制限はないが、通常は2nm~5μmの範囲であり、より好ましくは2~500nmであり、更に好ましくは5~200nmである。

【0190】

また、有機EL素子においては発光層で生じた光を電極から取り出す際、発光層から直接取り出される光と、光を取り出す電極と対極に位置する電極によって反射されてから取り出される光とが干渉を起こすことが知られている。光が陰極で反射される場合は、電子輸送層の総層厚を5nm~1μmの間で適宜調整することにより、この干渉効果を効率的に利用することが可能である。

【0191】

一方で、電子輸送層の層厚を厚くすると電圧が上昇しやすくなるため、特に層厚が厚い場合においては、電子輸送層の電子移動度は $10^{-5} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上であることが好ましい。

【0192】

電子輸送層に用いられる材料(以下、電子輸送材料という)としては、電子の注入性又は輸送性、正孔の障壁性のいずれかを有していればよく、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。

【0193】

例えば、含窒素芳香族複素環誘導体(カルバゾール誘導体、アザカルバゾール誘導体(カルバゾール環を構成する炭素原子の一つ以上が窒素原子に置換されたもの)、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、ピラジン誘導体、ピリダジン誘導体、トリアジン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、フェナントロリン誘導体、アザトリフェニレン誘導体、オキサゾール誘導体、チアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ベンズオキサゾール誘導体、ベンズチアゾール誘導体等)、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾチオフエン誘導体、シロール誘導体、芳香族炭化水素環誘導体(ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、トリフェニレン等)等が挙げられる。

【0194】

また、配位子にキノリノール骨格やジベンゾキノリノール骨格を有する金属錯体、例えば、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(Alq)、トリス(5,7-ジクロロ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5,7-ジブromo-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(Znq)等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。

【0195】

その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基

10

20

30

40

50

やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様にn型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

【0196】

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

【0197】

本発明に用いられる電子輸送層においては、電子輸送層にドーブ材をゲスト材料としてドーブして、n性の高い(電子リッチ)電子輸送層を形成してもよい。ドーブ材としては、金属錯体やハロゲン化金属など金属化合物等のn型ドーパントが挙げられる。このような構成の電子輸送層の具体例としては、例えば、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)等の文献に記載されたものが挙げられる。

10

【0198】

本発明の有機EL素子に用いられる、公知の好ましい電子輸送材料の具体例としては、以下の文献に記載の化合物等が挙げられるが、これらに限定されない。

【0199】

米国特許第6528187号明細書、米国特許第7230107号明細書、米国特許出願公開第2005/0025993号明細書、米国特許出願公開第2004/0036077号明細書、米国特許出願公開第2009/0115316号明細書、米国特許出願公開第2009/0101870号明細書、米国特許出願公開第2009/0179554号明細書、国際公開第2003/060956号、国際公開第2008/132085号、Appl. Phys. Lett., 75, 4 (1999)、Appl. Phys. Lett., 79, 449 (2001)、Appl. Phys. Lett., 81, 162 (2002)、Appl. Phys. Lett., 81, 162 (2002)、Appl. Phys. Lett., 79, 156 (2001)、米国特許第7964293号明細書、米国特許出願公開第2009/030202号明細書、国際公開第2004/080975号、国際公開第2004/063159号、国際公開第2005/085387号、国際公開第2006/067931号、国際公開第2007/086552号、国際公開第2008/114690号、国際公開第2009/069442号、国際公開第2009/066779号、国際公開第2009/054253号、国際公開第2011/086935号、国際公開第2010/150593号、国際公開第2010/047707号、欧州特許第2311826号明細書、特開2010-251675号公報、特開2009-209133号公報、特開2009-124114号公報、特開2008-277810号公報、特開2006-156445号公報、特開2005-340122号公報、特開2003-45662号公報、特開2003-31367号公報、特開2003-282270号公報、国際公開第2012/115034号等である。

20

30

【0200】

本発明におけるより好ましい電子輸送材料としては、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、ピラジン誘導体、トリアジン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾチオフエン誘導体、カルバゾール誘導体、アザカルバゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体が挙げられる。

40

【0201】

電子輸送材料は単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

【0202】

《正孔阻止層》

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有する層であり、好ましく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小さい材料からなり、電子を輸送しつつ正孔

50



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。

【0203】

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

【0204】

本発明の有機EL素子に設ける正孔阻止層は、発光層の陰極側に隣接して設けられることが好ましい。

【0205】

本発明に用いられる正孔阻止層の層厚としては、好ましくは3～100nmの範囲であり、更に好ましくは5～30nmの範囲である。

10

【0206】

正孔阻止層に用いられる材料としては、前述の電子輸送層に用いられる材料が好ましく用いられ、また、前述のホスト化合物として用いられる材料も正孔阻止層に好ましく用いられる。

【0207】

《電子注入層》

本発明に用いられる電子注入層（「陰極バッファ層」ともいう）とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために陰極と発光層と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いる。

20

【0208】

本発明において電子注入層は必要に応じて設け、上記の如く陰極と発光層との間、又は陰極と電子輸送層との間に存在させてもよい。

【0209】

電子注入層はごく薄い膜であることが好ましく、素材にもよるがその層厚は0.1～5nmの範囲が好ましい。また構成材料が断続的に存在する不均一な膜であってもよい。

【0210】

電子注入層は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、電子注入層に好ましく用いられる材料の具体例としては、ストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属、フッ化リチウム、フッ化ナトリウム、フッ化カリウム等に代表されるアルカリ金属化合物、フッ化マグネシウム、フッ化カルシウム等に代表されるアルカリ土類金属化合物、酸化アルミニウムに代表される金属酸化物、リチウム8-ヒドロキシキノレート(Liq)等に代表される金属錯体等が挙げられる。また、前述の電子輸送材料を用いることも可能である。

30

【0211】

また、上記の電子注入層に用いられる材料は単独で用いてもよく、複数種を併用して用いてもよい。

【0212】

《正孔輸送層》

本発明において正孔輸送層とは、正孔を輸送する機能を有する材料からなり、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有していればよい。

40

【0213】

本発明に用いられる正孔輸送層の総層厚については特に制限はないが、通常は5nm～5μmの範囲であり、より好ましくは2～500nmであり、更に好ましくは5nm～200nmである。

【0214】

正孔輸送層に用いられる材料（以下、正孔輸送材料という）としては、正孔の注入性又は輸送性、電子の障壁性のいずれかを有していればよく、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。

【0215】

50

例えば、ポルフィリン誘導体、フタロシアニン誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ポリアリーリアルカン誘導体、トリアリーリアルアミン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、イソインドール誘導体、アントラセンやナフタレン等のアセン系誘導体、フルオレン誘導体、フルオレノン誘導体、及びポリビニルカルバゾール、芳香族アミンを主鎖又は側鎖に導入した高分子材料又はオリゴマー、ポリシラン、導電性ポリマー又はオリゴマー（例えばPEDOT: PSS、アニリン系共重合体、ポリアニリン、ポリチオフェン等）等が挙げられる。

【0216】

トリアリーリアルアミン誘導体としては、NPDに代表されるベンジジン型や、MTDATAに代表されるスターバースト型、トリアリーリアルアミン連結コア部にフルオレンやアントラセンを有する化合物等が挙げられる。

【0217】

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

【0218】

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

【0219】

また、特開平11-251067号公報、J. Huang et al. 著文献 (Applied Physics Letters 80 (2002), p. 139) に記載されているような、いわゆるp型正孔輸送材料やp型-Si、p型-SiC等の無機化合物を用いることもできる。更にIr(ppy)<sub>3</sub>に代表されるような中心金属にIrやPtを有するオルトメタル化有機金属錯体も好ましく用いられる。

【0220】

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、トリアリーリアルアミン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、アザトリフェニレン誘導体、有機金属錯体、芳香族アミンを主鎖又は側鎖に導入した高分子材料又はオリゴマー等が好ましく用いられる。

【0221】

本発明の有機EL素子に用いられる、公知の好ましい正孔輸送材料の具体例としては、上記で挙げた文献の他、以下の文献に記載の化合物等が挙げられるが、これらに限定されない。

【0222】

例えば、Appl. Phys. Lett., 69, 2160 (1996)、J. Lumin., 72-74, 985 (1997)、Appl. Phys. Lett., 78, 673 (2001)、Appl. Phys. Lett., 90, 183503 (2007)、Appl. Phys. Lett., 90, 183503 (2007)、Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)、Synth. Met., 87, 171 (1997)、Synth. Met., 91, 209 (1997)、Synth. Met., 111, 421 (2000)、SID Symposium Digest, 37, 923 (2006)、J. Mater. Chem., 3, 319 (1993)、Adv. Mater., 6, 677 (1994)、Chem. Mater., 15, 3148 (2003)、米国特許出願公開第2003/0162053号明細書、米国特許出願公開第2002/0158242号明細書、米国特許出願公開第2006/0240279号明細書、米国特許出願公開第2008/0220265号明細書、米国特許第5061569号明細書、国際公開第20

10

20

30

40

50

07/002683号、国際公開第2009/018009号、欧州特許第650955号明細書、米国特許出願公開第2008/0124572号明細書、米国特許出願公開第2007/0278938号明細書、米国特許出願公開第2008/0106190号明細書、米国特許出願公開第2008/0018221号明細書、国際公開第2012/115034号、特表2003-519432号公報、特開2006-135145号公報、米国特許出願番号13/585981号等である。

【0223】

正孔輸送材料は単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

【0224】

《電子阻止層》

電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層の機能を有する層であり、好ましく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。

【0225】

また、前述する正孔輸送層の構成を必要に応じて、本発明に用いられる電子阻止層として用いることができる。

【0226】

本発明の有機EL素子に設ける電子阻止層は、発光層の陽極側に隣接して設けられることが好ましい。

【0227】

本発明に用いられる電子阻止層の層厚としては、好ましくは3～100nmの範囲であり、更に好ましくは5～30nmの範囲である。

【0228】

電子阻止層に用いられる材料としては、前述の正孔輸送層に用いられる材料が好ましく用いられ、また、前述のホスト化合物として用いられる材料も電子阻止層に好ましく用いられる。

【0229】

《正孔注入層》

本発明に用いられる正孔注入層（「陽極バッファ層」ともいう）とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために陽極と発光層と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いる。

【0230】

本発明において正孔注入層は必要に応じて設け、上記の如く陽極と発光層又は陽極と正孔輸送層との間に存在させてもよい。

【0231】

正孔注入層は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、正孔注入層に用いられる材料としては、例えば前述の正孔輸送層に用いられる材料等が挙げられる。

【0232】

中でも銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニン誘導体、特表2003-519432号公報や特開2006-135145号公報等に記載されているようなヘキサザトリフェニレン誘導体、酸化バナジウムに代表される金属酸化物、アモルファスカーボン、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、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム錯体等に代表されるオルトメタル化錯体、トリアリールアミン誘導体等が好ましい。

【0233】

前述の正孔注入層に用いられる材料は単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

【0234】

10

20

30

40

50

## 《含有物》

前述した本発明における有機層は、更に他の含有物が含まれていてもよい。

## 【0235】

含有物としては、例えば臭素、ヨウ素及び塩素等のハロゲン元素やハロゲン化合物、Pd、Ca、Na等のアルカリ金属やアルカリ土類金属、遷移金属の化合物や錯体、塩等が挙げられる。

## 【0236】

含有物の含有量は、任意に決定することができるが、含有される層の全質量%に対して1000ppm以下であることが好ましく、より好ましくは500ppm以下であり、更に好ましくは50ppm以下である。

## 【0237】

ただし、電子や正孔の輸送性を向上させる目的や、励起子のエネルギー移動を有利にするための目的等によってはこの範囲内ではない。

## 【0238】

## 《有機層の形成方法》

本発明に用いられる有機層（正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層等）の形成方法について説明する。

## 【0239】

本発明に用いられる有機層の形成方法は、特に制限はなく、従来公知の例えば真空蒸着法、湿式法（ウェットプロセスともいう）等による形成方法を用いることができる。ここで、有機層が、ウェットプロセスで形成された層であることが好ましい。すなわち、ウェットプロセスで有機EL素子を作製することが好ましい。有機EL素子をウェットプロセスで作製することで、均質な膜（塗膜）が得られやすく、且つピンホールが生成しにくい等の効果を奏することができる。なお、ここでの膜（塗膜）とは、ウェットプロセスによる塗布後に乾燥させた状態のものである。

## 【0240】

湿式法としては、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、スプレーコート法、カーテンコート法、LB法（ラングミュア・プロジェクト法）等があるが、均質な薄膜が得られやすく、且つ高生産性の点から、ダイコート法、ロールコート法、インクジェット法、スプレーコート法等のロール・to・ロール方式に対して適性の高い方法が好ましい。

## 【0241】

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

## 【0242】

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

## 【0243】

更に層毎に異なる製膜法を適用してもよい。製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50～450、真空度 $10^{-6}$ ～ $10^{-2}$ Pa、蒸着速度0.01～50nm/秒、基板温度-50～300、厚さ0.1nm～5 $\mu$ m、好ましくは5～200nmの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

## 【0244】

本発明に用いられる有機層の形成は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施しても構わない。その際

10

20

30

40

50

は作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行うことが好ましい。

【0245】

《陽極》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4 eV以上、好ましくは4.5 V以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、インジウムチンオキシド(ITO)、SnO<sub>2</sub>、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZnO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。

【0246】

陽極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、又はパターン精度をあまり必要としない場合は(100 μm以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。

【0247】

又は、有機導電性化合物のように塗布可能な物質を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式製膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましい。

【0248】

陽極の厚さは材料にもよるが、通常10 nm~1 μm、好ましくは10~200 nmの範囲で選ばれる。

【0249】

《陰極》

陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。

【0250】

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

【0251】

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

【0252】

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

【0253】

《支持基板》

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

10

20

30

40

50

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

#### 【0254】

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

10

#### 【0255】

樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜又はその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよく、JIS K 7129 - 1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ $25 \pm 0.5$ 、相対湿度（ $90 \pm 2$ ）%RH）が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のバリア性フィルムであることが好ましく、更には、JIS K 7126 - 1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が、 $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

20

#### 【0256】

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

30

#### 【0257】

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

#### 【0258】

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

40

#### 【0259】

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

#### 【0260】

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

#### 【0261】

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

50

## 【0262】

## 《封止》

本発明の有機EL素子の封止に用いられる封止手段としては、例えば、封止部材と、電極、支持基板とを接着剤で接着する方法を挙げることができる。封止部材としては、有機EL素子の表示領域を覆うように配置されていればよく、凹板状でも、平板状でもよい。また、透明性、電気絶縁性は特に限定されない。

## 【0263】

封止部材として具体的には、ガラス板、ポリマー板、金属板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げること  
10  
ことができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属又は合金からなるものが挙げられる。

## 【0264】

本発明においては、有機EL素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム、金属フィルムを好ましく使用することができる。更には、ポリマーフィルムはJIS K  
7126 - 1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、JIS K 7129 - 1992に準拠した方法で測定された  
20  
、水蒸気透過度( $25 \pm 0.5$ 、相対湿度( $90 \pm 2$ )%)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。

## 【0265】

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

## 【0266】

接着剤として具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化及び熱硬化型接着剤、2-シアノアクリル酸エステル等の湿気硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系等の熱及び化学硬化型(二液混合)を挙げることができる。また、ホットメルト型のポリアミド、ポリエステル、ポリ  
30  
オレフィンを挙げることができる。また、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂接着剤を挙げることができる。

## 【0267】

なお、有機EL素子が熱処理により劣化する場合があるので、室温から80 までに接着硬化できるものが好ましい。また、前記接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。封止部分への接着剤の塗布は市販のディスペンサーを使ってもよいし、スクリーン印刷のように印刷してもよい。

## 【0268】

また、有機層を挟み支持基板と対向する側の電極の外側に該電極と有機層を被覆し、支持基板と接する形で無機物、有機物の層を形成し封止膜とすることも好適にできる。この  
40  
場合、該膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、窒化ケイ素等を用いることができる。

## 【0269】

更に該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることが好ましい。これらの膜の形成方法については特に限定はなく、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、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。

10

20

30

40

50

## 【0270】

封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相及び液相では、窒素、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。

## 【0271】

吸湿性化合物としては、例えば、金属酸化物（例えば、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム等）、硫酸塩（例えば、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸コバルト等）、金属ハロゲン化物（例えば、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、フッ化セシウム、フッ化タンタル、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（例えば、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、金属ハロゲン化物及び過塩素酸類においては無水塩が好適に用いられる。

10

## 【0272】

## 《保護膜、保護板》

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

20

## 【0273】

## 《光取り出し向上技術》

有機エレクトロルミネッセンス素子は、空気よりも屈折率の高い（屈折率1.6～2.1程度の範囲内）層の内部で発光し、発光層で発生した光のうち15%から20%程度の光しか取り出せないと一般的に言われている。これは、臨界角以上の角度で界面（透明基板と空気との界面）に入射する光は、全反射を起こし素子外部に取り出すことができないことや、透明電極ないし発光層と透明基板との間で光が全反射を起こし、光が透明電極ないし発光層を導波し、結果として、光が素子側面方向に逃げるためである。

30

## 【0274】

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

40

## 【0275】

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

## 【0276】

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

## 【0277】

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

50



## 【0278】

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

## 【0279】

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

## 【0280】

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

## 【0281】

導入する回折格子は、二次元的な周期屈折率を持っていることが望ましい。これは、発光層で発光する光はあらゆる方向にランダムに発生するので、ある方向にのみ周期的な屈折率分布を持っている一般的な一次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。

## 【0282】

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

## 【0283】

回折格子を導入する位置としては、いずれかの層間、若しくは媒質中（透明基板内や透明電極内）でも良いが、光が発生する場所である有機発光層の近傍が望ましい。このとき、回折格子の周期は、媒質中の光の波長の約1/2～3倍程度の範囲内が好ましい。回折格子の配列は、正方形のラチス状、三角形のラチス状、八ニカムラチス状等、二次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

## 【0284】

## 《集光シート》

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

## 【0285】

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

## 【0286】

集光シートとしては、例えば液晶表示装置のLEDバックライトで実用化されているものを用いることが可能である。このようなシートとして例えば、住友スリーエム社製輝度上昇フィルム（BEF）等を用いることができる。プリズムシートの形状としては、例えば基材に頂角90度、ピッチ50 $\mu\text{m}$ の状のストライプが形成されたものであってもよいし、頂角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であっても良い。

## 【0287】

10

20

30

40

50

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

【0288】

《用途》

本発明の有機EL素子は、表示装置、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。

【0289】

発光光源として、例えば、照明装置(家庭用照明、車内照明)、時計や液晶用バックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機的光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではなく、特に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。

【0290】

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

【0291】

《表示装置》

発明の有機EL素子を具備した、本発明の表示装置の一態様について説明する。以下、本発明の有機EL素子を有する表示装置の一例を図面に基づいて説明する。

【0292】

図1は、本発明の有機EL素子を具備した表示装置の構成の一例を示した概略斜視図であって、有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。図1に示すとおり、ディスプレイ1は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行う制御部B等からなる。

【0293】

制御部Bは表示部Aと電気的に接続されている。制御部Bは、複数の画素それぞれに対し、外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送る。その結果、各画素が走査信号により走査線毎に画像データ信号に応じて順次発光し、画像情報が表示部Aに表示される。

【0294】

図2は、図1に記載の表示部Aの模式図である。

【0295】

表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、複数の画素3等とを有する。

【0296】

表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。

【0297】

図2においては、画素3の発光した光が白矢印方向(下方向)へ取り出される場合を示している。配線部の走査線5及び複数のデータ線6はそれぞれ導電材料から構成されている。走査線5とデータ線6は互いに格子状に直交して、その直交する位置で画素3に接続されている(詳細は図示していない)。

【0298】

画素3は、走査線5から走査信号が送信されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。

【0299】

発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を適宜同一基板上に並列配置することによって、フルカラー表示が可能となる。

【0300】

10

20

30

40

50

## 《照明装置》

本発明の有機EL素子を具備した、本発明の照明装置の一態様について説明する。

## 【0301】

本発明の有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚さ300 $\mu$ mのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラックストラックLC0629B）を適用し、これを陰極上に重ねて透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して、硬化させて封止し、図3、図4に示すような照明装置を形成することができる。

## 【0302】

図3は、照明装置の概略図を示し、本発明の有機EL素子101はガラスカバー102で覆われている（なお、ガラスカバー102での封止作業は、有機EL素子101を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度99.999%以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行う。）。 10

## 【0303】

図4は、照明装置の断面図を示し、図4において、105は陰極、106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板を示す。なお、ガラスカバー102内には窒素ガス108が充填され、捕水剤109が設けられている。

## 【実施例】

## 【0304】

以下、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例において「部」又は「%」の表示を用いるが、特に断りがない限り「体積%」を表す。また、表1～4の本発明の有機EL素子で使用したホスト化合物及び電子輸送材料の番号は、一般式(A1)～(A5)で表される化合物の具体例の番号に対応する。 20

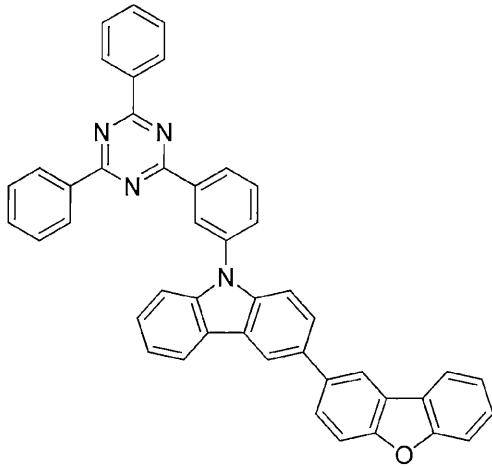
## 【0305】

《実施例に用いた化合物》

## 【0306】

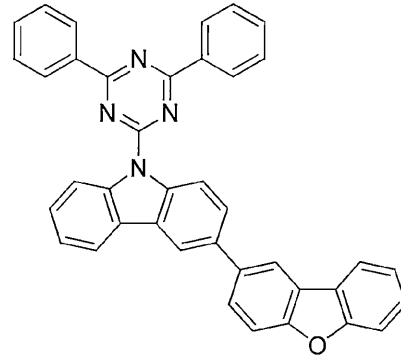
【化49】

比較化合物1



(国際公開第2011/019156号にて開示の化合物)

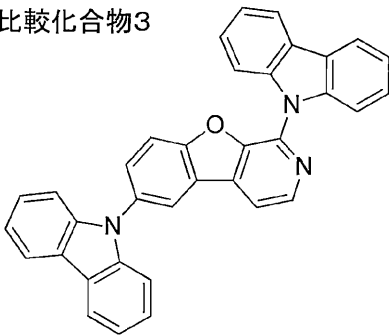
比較化合物2



(国際公開第2011/019156号にて開示の化合物)

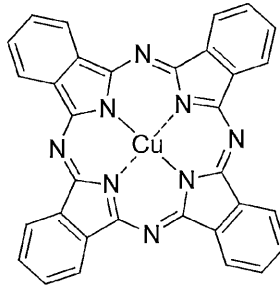
10

比較化合物3

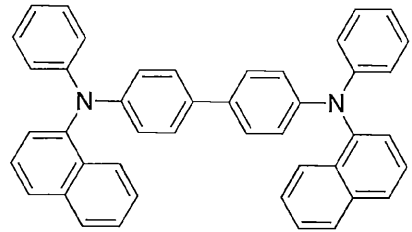


(国際公開第2010/083359号にて開示の化合物)

HT-1(CuPc)



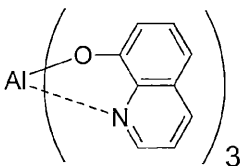
HT-2(α-NPD)



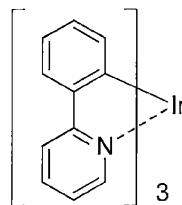
20

30

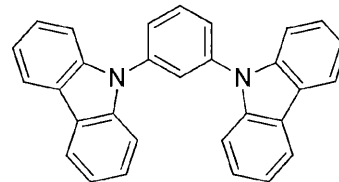
ET-1(Alq<sub>3</sub>)



DP-1



GH-1



40

【実施例1】

【0307】

《有機EL素子1-1の作製》

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

【0308】

50

この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方モリブデン製抵抗加熱ポートにHT-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにHT-2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに比較化合物1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにDP-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにET-1を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

#### 【0309】

次いで真空槽を $4 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、HT-1の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で、透明支持基板に蒸着し10nmの正孔注入層を設けた。

更にHT-2の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で、前記正孔注入層上に蒸着し30nmの正孔輸送層を設けた。

更に比較化合物1とDP-1の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.1nm/秒、0.010nm/秒で、前記正孔輸送層上に共蒸着し40nmの発光層を設けた。

#### 【0310】

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

引き続き、電子注入層(陰極バッファ層)としてフッ化リチウム0.5nmを蒸着し、更にアルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-1を作製した。

#### 【0311】

##### 《有機EL素子1-2~1-12の作製》

有機EL素子1-1の作製において、比較化合物1を表1に記載のホスト化合物に変えた以外は同様にして有機EL素子1-2~1-12を作製した。

#### 【0312】

##### 《有機EL素子1-1~1-12の評価》

得られた有機EL素子1-1~1-12を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300 $\mu$ mのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材としてエポキシ系光硬化型接着剤(東亜合成社製ラックストラックLC0629B)を適用し、これを上記陰極上に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して硬化させて封止し、図3及び図4に示すような構成の照明装置を作製して評価した。

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

#### 【0313】

##### (1) 外部取り出し量子効率(発光効率ともいう)

有機EL素子を室温(約23~25)、2.5mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下による点灯を行い、点灯開始直後の発光輝度(L)[cd/m<sup>2</sup>]を測定することにより、外部取り出し量子効率( )を算出した。

ここで、発光輝度の測定はCS-1000(コニカミノルタセンシング製)を用いて行った。表1には有機EL素子1-1を100とする相対値で表した。値が大きいほうが比較に対して発光効率に優れていることを示す。

#### 【0314】

##### (2) 高温半減寿命

有機EL素子を室温で初期輝度4000cd/m<sup>2</sup>を与える電流で定電流駆動して、初期輝度の1/2になる時間を求め、これを半減寿命の尺度とした。

次に、有機EL素子を高温条件下(約50 $\pm$ 5)の恒温槽に入れ、上記と同様に半減寿命を算出した。

各有機EL素子の高温半減寿命は下記式を用いて算出した。

$$\text{高温半減寿命(\%)} = (\text{高温条件下での半減寿命}) / (\text{室温での半減寿命}) \times 100$$

10

20

30

40

50

表 1 には有機 EL 素子 1 - 1 を 100 とする相対値で表した。値が大きいほうが比較に対して温度変化に対する耐久性が高い、つまり高温下での発光寿命に優れていることを示す。

【0315】

(3) 高温保存安定性

有機 EL 素子を 85 で 10 時間保存した後、室温で 10 時間保存した。これを 3 周期繰り返した。保存前後における  $2.5 \text{ mA} / \text{cm}^2$  の定電流駆動での各輝度を測定し、各輝度比を下式に従って求め、これを高温保存安定性の尺度とした。

高温保存安定性 (%) = 保存後の輝度 ( $2.5 \text{ mA} / \text{cm}^2$ ) / 保存前の輝度 ( $2.5 \text{ mA} / \text{cm}^2$ )  $\times 100$

値が大きいほうが比較に対して、高温下で保存した後においても発光強度の経時変化が小さい、つまり高温保存安定性に優れていることを示す。

【0316】

評価結果を表 1 に示す。なお、外部取り出し量子効率及び高温半減寿命は有機 EL 素子 1 - 1 を 100 とする相対値で表した。

【0317】

【表 1】

有機 EL 素子 No.	ホスト化合物	外部取り出し量子効率 (相対値)	高温半減寿命 (相対値)	高温保存安定性 (%)	備考
1-1	比較化合物 1	100	100	63	比較例
1-2	比較化合物 2	101	98	60	比較例
1-3	(1)	140	135	95	本発明
1-4	(2)	130	128	92	本発明
1-5	(3)	128	131	88	本発明
1-6	(4)	130	134	90	本発明
1-7	(5)	132	129	85	本発明
1-8	(6)	129	130	83	本発明
1-9	(7)	135	140	93	本発明
1-10	(8)	134	138	90	本発明
1-11	(9)	129	135	87	本発明
1-12	(10)	125	120	80	本発明

【0318】

表 1 から明らかな通り、本発明の化合物をホストに用いた有機 EL 素子 1 - 3 ~ 1 - 12 は、比較の有機 EL 素子 1 - 1、1 - 2 に比べ、外部取り出し量子効率、高温半減寿命及び高温保存安定性に優れていることがわかった。

【実施例 2】

【0319】

《有機 EL 素子 2 - 1 ~ 2 - 5 の作製》

実施例 1 の有機 EL 素子 1 - 1 の作製において、比較化合物 1 を表 2 に記載のホスト化合物に変えた以外は同様にして有機 EL 素子 2 - 1 ~ 2 - 5 を作製した。

【0320】

《有機 EL 素子 2 - 1 ~ 2 - 5 の評価》

得られた有機 EL 素子を評価するに際しては、実施例 1 の有機 EL 素子 1 - 1 ~ 1 - 12 と同様に封止し、図 3、図 4 に示すような構成の照明装置を作製して、実施例 1 と同様の項目について評価した。

【0321】

評価結果を表 2 に示す。なお、外部取り出し量子効率及び高温半減寿命は有機 EL 素子

2 - 1 を 100 とする相対値で表した。

【0322】

【表2】

有機EL素子 No.	ホスト化合物	外部取り出し量子効率 (相対値)	高温半減寿命 (相対値)	高温保存安定性 (%)	備考
2-1	比較化合物3	100	100	65	比較例
2-2	(11)	128	135	90	本発明
2-3	(12)	120	137	80	本発明
2-4	(13)	124	130	84	本発明
2-5	(14)	116	126	86	本発明

10

【0323】

表2から明らかな通り、本発明の化合物をホストに用いた有機EL素子2-2~2-5は、比較の有機EL素子2-1に比べ、外部取り出し量子効率、高温半減寿命及び高温保存安定性に優れていることがわかった。

【実施例3】

【0324】

《有機EL素子3-1~3-12の作製》

実施例1の有機EL素子1-1の作製において、発光層に用いた比較化合物1をGH-1に変更し、ET-1を表3に記載の電子輸送材料に変えた以外は同様にして有機EL素子3-1~3-12を作製した。

20

【0325】

《有機EL素子3-1~3-12の評価》

得られた有機EL素子を評価するに際しては、実施例1の有機EL素子1-1~1-12と同様に封止し、図3、図4に示すような構成の照明装置を作製して下記の評価を行った。

【0326】

(1) 外部取り出し量子効率、(2) 高温半減寿命、(3) 高温保存安定性

これらについては、実施例1と同様にして評価した。

30

【0327】

(4) 駆動電圧

有機EL素子を室温(約23~25)、2.5mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下で駆動したときの電圧を各々測定し、測定結果を下記に示した計算式により計算した。表3には有機EL素子3-1を100とする相対値で表した。

電圧 = (各素子の駆動電圧 / 有機EL素子3-1の駆動電圧) × 100

なお、値が小さいほうが比較に対して駆動電圧が低いことを示す。

【0328】

(5) 駆動時の電圧上昇

有機EL素子を室温(約23~25)、2.5mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下により駆動した時の電圧を各々測定し、測定結果を下記に示した計算式により計算した。表3には有機EL素子3-1を100とする相対値で表した。

40

駆動時の電圧上昇(相対値) = 輝度半減時の駆動電圧 - 初期駆動電圧

なお、値が小さいほうが比較に対して駆動時の電圧上昇が小さいことを示す。

【0329】

評価結果を表3に示す。なお、外部取り出し量子効率、高温半減寿命、駆動電圧及び駆動時の電圧上昇は有機EL素子3-1を100とする相対値で表した。

【0330】

【表 3】

有機 EL 素子 No.	電子輸送材料	外部取り出し量子効率 (相対値)	高温半減寿命 (相対値)	高温保存安定性 (%)	駆動電圧	駆動時の電圧上昇	備考
3-1	比較化合物 1	100	100	58	100	100	比較例
3-2	比較化合物 2	103	104	55	96	104	比較例
3-3	(1)	134	136	82	71	61	本発明
3-4	(2)	130	128	76	75	62	本発明
3-5	(3)	127	130	74	74	64	本発明
3-6	(4)	130	135	86	60	50	本発明
3-7	(5)	128	130	78	65	52	本発明
3-8	(6)	132	128	80	62	55	本発明
3-9	(7)	127	129	83	66	59	本発明
3-10	(8)	128	125	75	70	62	本発明
3-11	(9)	125	123	78	69	65	本発明
3-12	(10)	120	116	73	75	54	本発明

10

## 【0331】

20

表 3 から明らかな通り、本発明の化合物を電子輸送材料に用いた有機 EL 素子 3-3 ~ 3-12 は、比較の有機 EL 素子 3-1、3-2 に比べ、外部取り出し量子効率、高温半減寿命及び高温保存安定性に優れ、更に低電圧で駆動し、駆動時の電圧上昇も抑えられることがわかった。

## 【実施例 4】

## 【0332】

《有機 EL 素子 4-1 ~ 4-17 の作製》

実施例 3 で作製した有機 EL 素子 3-1 において電子輸送材料を比較化合物 1 から表 4 の電子輸送材料に変更した以外は同様にして有機 EL 素子 4-1 ~ 4-17 を作製した。

## 【0333】

30

《有機 EL 素子 4-1 ~ 4-17 の評価》

得られた有機 EL 素子を評価するに際しては、実施例 3 の有機 EL 素子 3-1 ~ 3-12 と同様に封止し、図 3、図 4 に示すような構成の照明装置を作製して、実施例 3 と同様の項目について評価した。

## 【0334】

評価結果を表 4 に示す。なお、外部取り出し量子効率、高温半減寿命、駆動電圧及び駆動時の電圧上昇は有機 EL 素子 4-1 を 100 とする相対値で表した。

## 【0335】



【表 4】

有機 EL 素子 No.	電子輸送材料	外部取り出し量子効率 (相対値)	高温半減寿命 (相対値)	高温保存安定性 (%)	駆動電圧	駆動時の電圧上昇	備考
4-1	比較化合物 3	100	100	52	100	100	比較例
4-2	(11)	126	121	80	70	55	本発明
4-3	(12)	124	117	76	75	67	本発明
4-4	(13)	120	113	70	73	62	本発明
4-5	(14)	118	110	72	80	71	本発明
4-6	(A5-1)	124	121	79	70	55	本発明
4-7	(A5-2)	125	120	78	68	58	本発明
4-8	(A5-10)	120	122	77	67	60	本発明
4-9	(A5-12)	125	125	78	69	61	本発明
4-10	(A5-14)	126	127	80	70	55	本発明
4-11	(A5-17)	125	129	81	66	60	本発明
4-12	(A5-23)	120	123	82	69	59	本発明
4-13	(A5-24)	123	120	75	70	61	本発明
4-14	(A5-27)	120	121	77	65	55	本発明
4-15	(A5-29)	124	126	76	70	58	本発明
4-16	(A5-31)	120	123	74	68	61	本発明
4-17	(A5-23)	125	120	78	68	55	本発明

10

20

## 【0336】

表 4 から明らかな通り、本発明の化合物を電子輸送材料に用いた有機 EL 素子 4-2 ~ 4-17 は、比較の有機 EL 素子 4-1 に比べ、外部取り出し量子効率、高温半減寿命及び高温保存安定性に優れ、更に低電圧で駆動し、駆動時の電圧上昇も抑えられることがわかった。

30

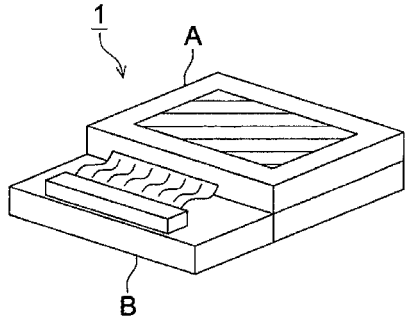
## 【符号の説明】

## 【0337】

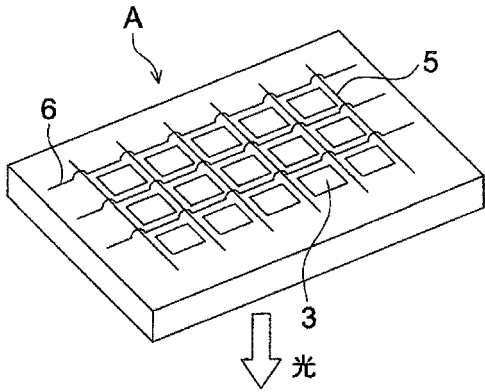
- 1 ディスプレイ
- 3 画素
- 5 走査線
- 6 データ線
- A 表示部
- B 制御部
- 101 有機 EL 素子
- 102 ガラスカバー
- 105 陰極
- 106 有機 EL 層
- 107 透明電極付きガラス基板
- 108 窒素ガス
- 109 捕水剤

40

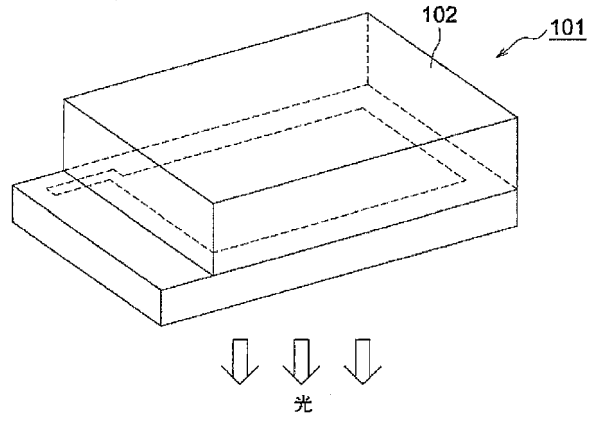
【 図 1 】



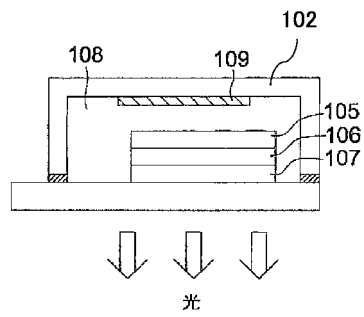
【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I テーマコード(参考)  
C 0 7 D 491/048 (2006.01) C 0 7 D 519/00 3 0 1  
C 0 7 D 491/048

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 BB04 BB06 BB07 BB08 CC04 CC21  
CC24 CC45 DD53 DD59 DD64 DD67 DD68 DD69 DD74 DD78  
GG06  
4C050 AA01 AA07 BB07 CC16 EE01 FF01 GG04 HH04  
4C063 AA03 AA05 BB01 BB02 CC43 CC76 DD08 EE10  
4C072 MM08 UU05