

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4966203号  
(P4966203)

(45) 発行日 平成24年7月4日(2012.7.4)

(24) 登録日 平成24年4月6日(2012.4.6)

(51) Int.Cl.	F 1		
H05B 33/12	(2006.01)	H05B 33/12	C
H01L 51/50	(2006.01)	H05B 33/14	B
H05B 33/10	(2006.01)	H05B 33/10	
C09K 11/06	(2006.01)	C09K 11/06	680
C08G 61/12	(2006.01)	C08G 61/12	

請求項の数 20 (全 35 頁)

(21) 出願番号	特願2007-547667 (P2007-547667)
(86) (22) 出願日	平成17年12月23日 (2005.12.23)
(65) 公表番号	特表2008-525957 (P2008-525957A)
(43) 公表日	平成20年7月17日 (2008.7.17)
(86) 國際出願番号	PCT/GB2005/005082
(87) 國際公開番号	W02006/067508
(87) 國際公開日	平成18年6月29日 (2006.6.29)
審査請求日	平成19年8月24日 (2007.8.24)
(31) 優先権主張番号	0428413.9
(32) 優先日	平成16年12月24日 (2004.12.24)
(33) 優先権主張国	英國 (GB)
(31) 優先権主張番号	0514498.5
(32) 優先日	平成17年7月14日 (2005.7.14)
(33) 優先権主張国	英國 (GB)

(73) 特許権者	503419985 シーディーティー オックスフォード リ ミテッド イギリス国 シービー3 6ディーダブリ ュ ケンブリッジシャイア ケンボルン ビジネス パーク, ビルディング 202 O
(73) 特許権者	597063048 ケンブリッジ ディスプレイ テクノロジ ー リミテッド イギリス・ケンブリッジシャー・CB2 3 ・6 DW・キャンボーン・キャンボーン・ ビジネス・パーク・(番地なし)・ビルデ ィング・2020

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】発光装置

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

アノードと、  
カソードと、

前記アノードと前記カソードとの間の有機発光領域と、  
を含む有機発光装置であって、

前記有機発光領域が、

励起子の放射崩壊によって第1CIE座標を有する光を放射する青色光電界発光有機材料の層と、

励起子の放射崩壊によって第2CIE座標を有する光を本質的に放射する、より長波長の電界発光有機材料の層と、  
を含み、

前記青色光電界発光有機材料の層と前記より長波長の電界発光有機材料の層は、前記有機発光領域が、3000～9000Kで黒体によって放射される白色光と同等のCIEx座標と、黒体によって放射される前記白色光のCIEy座標の0.05以内のCIEy座標を有する領域に含まれる白色光を放射するように選択され、

前記より長波長の電界発光有機材料の層がポリマーを含み、

前記青色光電界発光有機材料が発光性ドーパントでドーピングされていないものであり、

前記青色光電界発光有機材料がポリマーを含む、有機発光装置。

10

20

**【請求項 2】**

前記より長波長の電界発光有機材料が実質的に架橋されていない、請求項 1 に記載の装置。

**【請求項 3】**

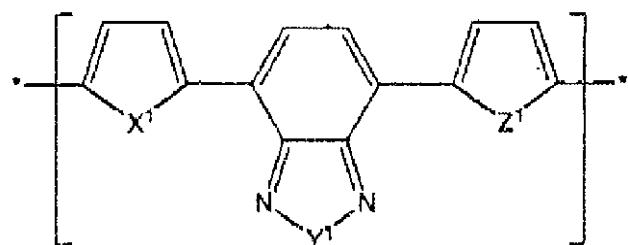
前記より長波長の電界発光有機材料が、溶液からの堆積後に熱処理することによって形成される、請求項 1 または 2 に記載の装置。

**【請求項 4】**

前記より長波長の電界発光有機材料が、下記式 (I) の繰り返し単位を含んで成るポリマーであり、

**【化 1】**

10



(I)

20

前記式中、X<sup>1</sup>、Y<sup>1</sup>およびZ<sup>1</sup>はそれぞれ独立して、O、S、C R<sub>2</sub>、S i R<sub>2</sub>またはN R であり、そしてRはそれぞれ独立して、アルキル、アリール、またはHである、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の装置。

**【請求項 5】**

前記青色光電界発光有機材料の層が、CIE<sub>x</sub>座標0.25以下およびCIE<sub>y</sub>座標0.3以下を有する光を放射する、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の装置。

**【請求項 6】**

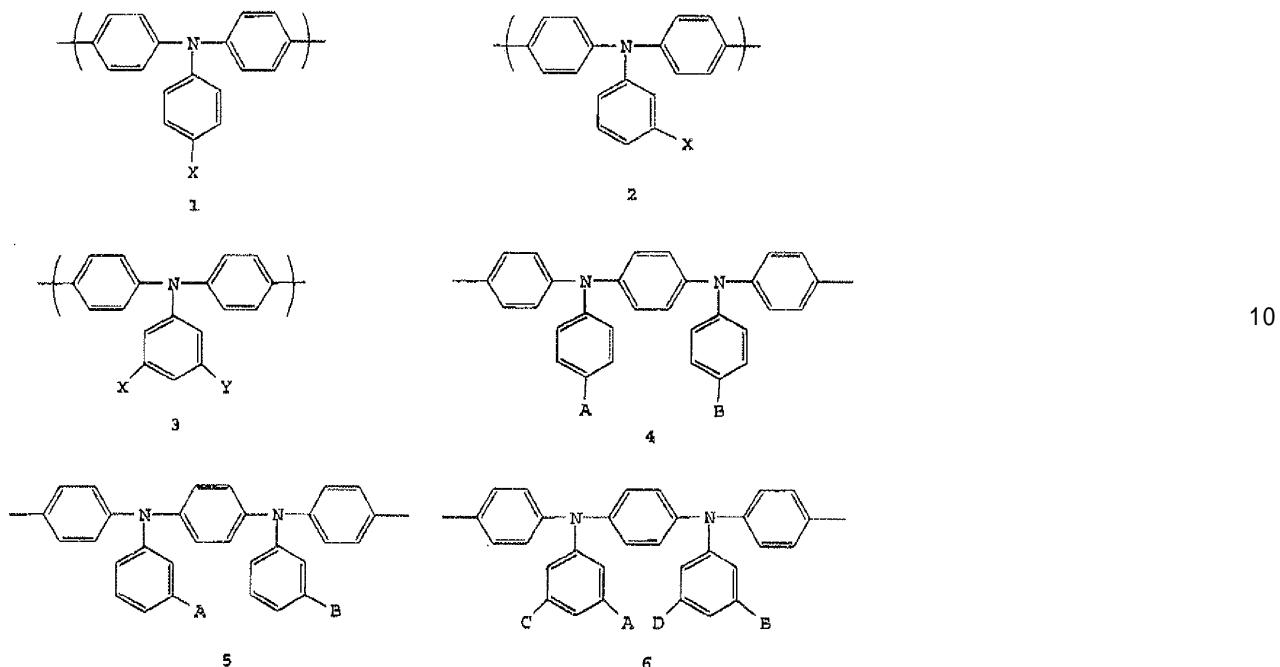
前記青色光電界発光有機材料と前記より長波長の電界発光有機材料は、それぞれ溶液処理可能なポリマーを含む、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の装置。

30

**【請求項 7】**

前記青色光電界発光有機材料が、下記の式 1 ~ 6 の少なくとも 1 つの繰り返し単位を含んで成るポリマーであり、

## 【化2】



前記式中、X、Y、A、B、CおよびDは独立してHまたは置換基から選択される、請求項6に記載の装置。

## 【請求項8】

前記青色光電界発光有機材料および前記より長波長の電界発光有機材料は、エミッターがそれ以上存在しないときに前記有機発光領域が白色光を放射するように選択される、請求項1～7のいずれか1項に記載の装置。

## 【請求項9】

前記より長波長の電界発光有機材料の層が、前記アノードと前記青色光電界発光有機材料の層との間に配置される、請求項1～8のいずれか1項に記載の装置。

## 【請求項10】

前記アノードと前記有機発光領域との間に配置されたホール輸送層を更に含む、請求項1～9のいずれか1項に記載の装置。

## 【請求項11】

請求項1～10のいずれか1項に記載の装置を具備する、フラットパネルディスプレイ用のバックライト。

## 【請求項12】

有機発光装置の製造方法であって、  
前記方法が、

アノードを提供することと、  
任意に、前記アノードの上にホール輸送層を形成することと、

前記アノードまたは前記ホール輸送層の上に、第1波長で光を本質的に放射する第1電界発光有機材料の層を堆積させることと、

前記第1電界発光有機材料の層の上に第2電界発光有機材料の層を堆積させることと、  
カソードを提供することと、  
を含み、

前記カソードと前記アノードとの間に、青色光電界発光有機材料の層およびより長波長の電界発光有機材料の層を含む有機材料発光領域が形成され、

前記第1電界発光有機材料の層が、前記青色光電界発光有機材料の層であり、前記第2電界発光有機材料の層が、前記より長波長の電界発光有機材料の層であるか、または、前記第1電界発光有機材料の層が、前記より長波長の電界発光有機材料の層であり、前記第2電界発光有機材料の層が、前記青色光電界発光有機材料の層であり、

前記青色光電界発光有機材料の層と前記より長波長の電界発光有機材料の層は、前記有機発光領域が、3000～9000Kで黒体によって放射される白色光と同等のCIE X座標と、前記黒体によって放射される前記白色光のCIE y座標の0.05以下のCIE y座標を有する領域に含まれる白色光を放射するように選択され、

前記より長波長の電界発光有機材料がポリマーを含み、

前記青色光電界発光有機材料が発光性ドーパントでドーピングされていないものあり、

前記青色光電界発光有機材料がポリマーを含む、有機発光装置の製造方法。

**【請求項13】**

前記第1電界発光有機材料が、前記より長波長の電界発光有機材料である、請求項12に記載の方法。 10

**【請求項14】**

前記第1電界発光有機材料の層を溶液から堆積後加熱し、そして前記第2有機材料の層を、前記第1電界発光有機材料が溶解する溶媒から堆積させる、請求項12または13に記載の方法。

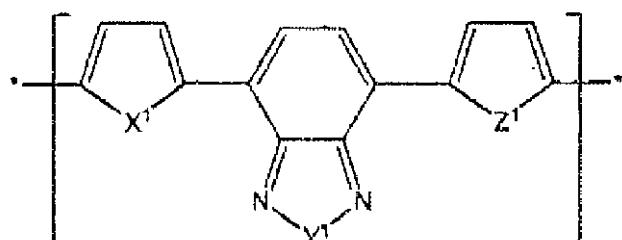
**【請求項15】**

前記第1電界発光有機材料の層を堆積後加熱する工程が、実質的に架橋が生じない条件下で行われる、請求項14に記載の方法。

**【請求項16】**

前記より長波長の電界発光有機材料が、下記式(I)の繰り返し単位を含んで成るポリマーであり、 20

**【化3】**



30

(I)

前記式中、X¹、Y¹およびZ¹はそれぞれ独立して、O、S、CR₂、SiR₂またはNRであり、そしてRはそれぞれ独立して、アルキル、アリール、またはHである、請求項12～15のいずれか1項に記載の方法。

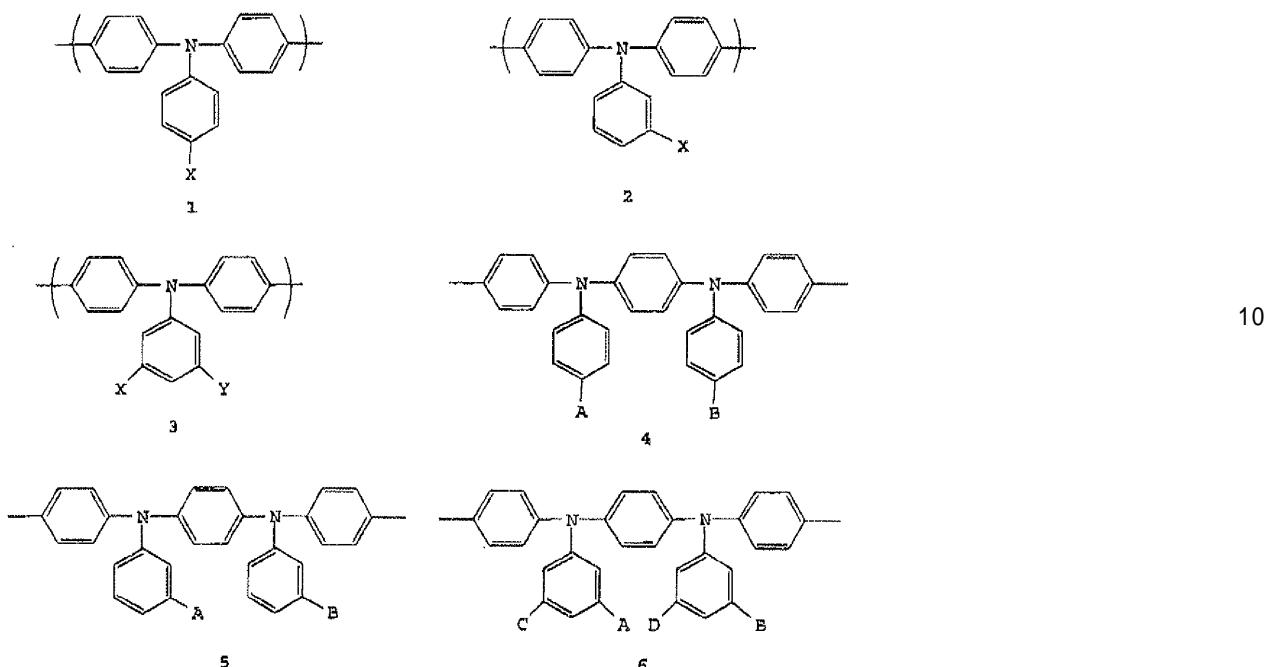
**【請求項17】**

前記青色光電界発光有機材料の層が、CIE X座標0.25以下およびCIE y座標0.3以下を有する光を放射する、請求項12～16のいずれか1項に記載の方法。

**【請求項18】**

前記青色光電界発光有機材料が下記式1～6の繰り返し単位のうち少なくとも1つを含んで成るポリマーであり、 40

## 【化4】



前記式中、X、Y、A、B、CおよびDは独立してHまたは置換基から選択される、請求項12～17のいずれか1項に記載の方法。

## 【請求項19】

前記青色光電界発光有機材料と前記より長波長の電界発光有機材料は、エミッターがそれ以上存在しないときに前記有機発光領域が白色光を放射するように選択される、請求項12～18のいずれか1項に記載の方法。

## 【請求項20】

前記有機発光装置がフラットパネルディスプレイ用のバックライトを構成する、請求項12～19のいずれか1項に記載の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

30

## 【0001】

本発明は、有機発光装置、前記装置の製造方法、および照明用途における前記装置の使用方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

有機発光装置(OLED)は、一般に、カソード、アノード、およびカソードとアノードの間の有機発光領域を含んで成る。発光性有機材料は、米国特許第4539507号明細書に記載されているような小さな分子の材料、または国際公開第90/13148号パンフレットに記載されているような高分子材料を含んでいてよい。カソードが電子を前記発光領域に送り、そしてアノードがホールを注入する。電子とホールを組み合わせると光子が生じる。

## 【0003】

図1にOLEDの典型的な断面構造を表す。OLEDは、典型的には、酸化インジウムスズ(ITO)層などの透明なアノード2でコーティングされたガラスまたはプラスチック基材1上に作製される。ITOコーティングされた基材を、電界発光有機材料3の少なくとも1つの薄膜層で覆い、そしてカルシウムのように仕事関数の低い金属のカソード材料4を適用して、任意にアルミニウム・キャッピング層(図示せず)で被覆する。例えば、電極と電界発光材料との間の電荷移動を高めるために、別の層を前記装置に加えてもよい。

## 【0004】

40

50

従来のディスプレイ全体に及ぶそれらの潜在的な利点のために、ディスプレイ用途でのOLEDの使用に関心が高まっている。OLEDは、比較的低い作動電圧と電力消費量を有し、また容易に加工して大面積ディスプレイを製造することができる。実用レベルでは、明るくかつ効率良く作動するが、生産信頼性が高く、そして使用時に安定なOLEDを製造する必要性がある。

#### 【0005】

OLEDはまた、フラットパネルディスプレイ用のバックライトなどの照明用途に使用される場合もある。この際、白色光を放射するOLEDを製造することが特に重要である。白色光は、3000~9000Kで黒体によって放射される放射線と定義される。しかしながら、白色に近似したCIE座標を有する光を作り出すことが可能なOLEDを製造することが提案されている一方で、本出願人らは、かかるOLEDが実用的には上手く製造されないことを認識している。10

#### 【0006】

米国特許第5807627号明細書には、多層を備えた電界発光装置についての初期の研究が記載されている。米国特許第5807627号明細書に例示されている装置には、ポリ(p-フェニレンビニレン)(PPV)などのポリアリーレンビニレンポリマー類が組み込まれている。前記装置の製造中、これらポリアリーレンビニレン類は前駆体ポリマーとして塗布され、そしてその後、熱処理によって機能性半導体ポリマーへと転化される。この例では、前駆体ポリマーはクロロホルムには溶解しないが、メタノールには溶解する。ポリ(2-メトキシ-5-(2-エチルヘキシリオキシ)1,4-フェニレンビニレン)(MEHPPV)などの別のポリマー層は、メタノールに溶解しないが、クロロホルムには溶解してスピンドルによって塗布することができる。20

#### 【0007】

米国特許第5807627号明細書に記載の装置構造は、赤から黄／緑までの発光色を発現する。白色発光の例は示されていなかった。例示された装置の寿命は非常に短く、また量子効率は比較的低いことが分かった。

#### 【0008】

米国特許第5,683,823号明細書は、青緑領域で発光する母材中に分散した赤色発光材料を包含する蛍光発光層を有する電界発光装置に関する事から、作り出される光は、ほぼ白色であると考えられる。30

#### 【0009】

米国特許第6,127,693号明細書は、ほぼ白色の光を放射することが可能な発光ダイオード(LED)を提供するとされている。この装置の有機発光層は、LEDがほぼ白色の光を放射することができるよう、青色光を発光するポリ(パラフェニレンビニレン)と赤色光を発光するアルコキシ置換PPV誘導体とのブレンドを含有する。

#### 【0010】

Chen(Chen)ら、ポリマー・プレプリント(Polymer Preprints)、41、835(2000年)には、白色光を放射するとされる発光ダイオードが記載されている。電荷トラップによって赤色を放つ架橋したホール輸送層と隣接して、ドーピングした青緑色のポリマー層を具備する、二重層装置が記載されている。前記青／緑色の層は、緑色蛍光染料ピロメテン546(Py546)でドーピングされた9,9'-ビス(2'-エチルヘキシリ)-ポリフルオレン(DEHF)から成る。緑色ドーパント染料の存在は、青色と緑色と赤色の3つの別個の発光の組み合わせと報告されている白色発光を実現するために必要である。この発光は、3色の光源それぞれの再結合から生じず、またこれらそれぞれからの励起子の放射崩壊からも生じない。架橋したホール輸送層(X-HTPA)の赤色発光は、架橋した膜内での凝集によって生じる。最大外部量子効率は、ほんの0.10%~0.25%の範囲であると報告されており、これはこの凝集の結果であり得る。更に、Chenらに記載されているような凝集は、赤色発光の色を調整できるほどに制御することは不可能である。40

#### 【0011】

10

20

30

40

50

欧洲特許第1434284号明細書は、白色発光する有機電界発光装置に関する。この装置は、少なくとも2つの有機電界発光(EL)材料と、少なくとも1つのフォトルミネッセンス(PL)材料とを具備している。段落[0043]には、白色光を作り出すために青色EL材料と赤色EL材料と緑色PL材料との組み合わせが開示されている。

#### 【発明の開示】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0012】

従って、十分に安定で、また照明用途のための白色光源としての実用化に適した有効性レベルで作動する有機発光装置が必要とされている。

#### 【課題を解決するための手段】

10

#### 【0013】

第1の態様では、本発明は、  
アノード、  
カソード、および  
前記アノードと前記カソードの間の有機発光領域  
を含んで成る有機発光装置であって、前記領域が、  
励起子の放射崩壊によって第1CIE座標を有する光を放射する青色光電界発光有機材料  
の層、および  
励起子の放射崩壊によって第2CIE座標を有する光を本質的に放射する、より長波長の  
電界発光有機材料の層

20

を含み；ここで、前記青色光材料の層とより長波長の材料の層は、前記有機発光領域が、  
3000~9000Kで黒体によって放射される白色光と同等のCIE×座標、および黒  
体によって放射される前記白色光のCIEy座標の0.05以内のCIEy座標を有する  
領域に含まれる白色光を放射するように選択される、前記有機発光装置を提供する。

#### 【0014】

30

白色光は、好ましくは約(0.31、0.33)のCIE座標を有している。一つの特に好ましい実施形態では、白色発光は、第1CIE座標を有する光と第2CIE座標を有する光との混合から本質的に成る。とりわけ、青色光電界発光材料は、発光性ドーパントでドーピングされていないことが好ましい。この場合、当業者には、第1CIE座標と第2CIE座標を結ぶ直線が白色光の領域を通過することが分かるであろう。

#### 【0015】

別の実施形態では、白色発光は、第1CIE座標を有する光と、第2CIE座標を有する光と、第3CIE座標を有する光との混合から本質的に成る。好ましくは、この第3CIE座標は、スペクトルでは、第1CIE座標と第2CIE座標の間にある。第3CIE座標は、青色光有機電界発光材料内に供給した発光性ドーパントによって提供されてもよい。この場合、当業者には、第1CIE座標と第2CIE座標と第3CIE座標を結ぶ三角形で画定される領域が白色光の領域と重なることが分かるであろう。

#### 【0016】

「赤色光電界発光材料」とは、電界発光によって、600nm~750nm、好ましくは600nm~700nm、より好ましくは610nm~650nmの範囲の波長の放射線、そしてもっとも好ましくは約650nm~660nmの発光ピークを有する放射線を放つ有機材料を表す。「赤色光」は、好ましくは、x>0.3、y>0.3の範囲のCIE座標を有する。

40

#### 【0017】

「緑色光電界発光材料」とは、電界発光によって510nm~580nm、好ましくは510nm~570nmの範囲の波長の放射線を放つ有機材料を表す。「赤色光」は、好ましくは、x>0.25、y>0.3の範囲のCIE座標を有する。

#### 【0018】

「青色光電界発光材料」とは、電界発光によって400nm~500nm、より好ましくは430nm~500nmの範囲の波長の放射線を放つ有機材料を表す。

50

## 【0019】

好ましくは、青色光の電界発光材料の層は、CIE<sub>x</sub>座標が0.25以下、より好ましくは0.2以下で、CIE<sub>y</sub>座標が0.3以下、より好ましくは0.2以下である光を放つ。

## 【0020】

青色光電界発光材料におけるCIE<sub>x</sub>およびy座標の選択は、一般に、より長波長の電界発光材料のCIE<sub>x</sub>およびy座標の選択に左右される。例えば、CIE座標が(0.65, 0.40)の赤色光電界発光材料は、CIE<sub>y</sub>座標が0.3を越え、例えば、0.32の青色光電界発光材料を必要とする場合がある。かかるCIE<sub>y</sub>座標は、青色光電界発光材料をシアン色の方へ移動させる。上述のように、当業者には、CIE座標間を結ぶ直線が白色光領域を通過するように座標を選択することが分かるであろう。10

## 【0021】

好ましくは、青色光電界発光有機材料およびより長波長の電界発光有機材料のうち少なくとも一方は、ポリマー、より好ましくは共役ポリマーである。最も好ましくは、前記材料はいずれも共役ポリマーである。

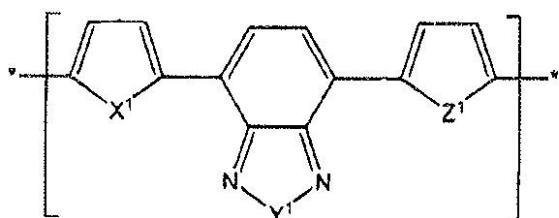
## 【0022】

驚くことに、安定な方式で白色光を放ち、しかも比較的高い外部量子効率を有する有機発光装置が製造できることが分かった。有機発光領域による白色光の発光に寄与する電界発光材料の層はそれぞれ、電荷キャリア注入時に励起子の放射崩壊によって光を放つ。20

## 【0023】

好ましいより長波長のポリマーとしては、任意に置換した下記の式(I)の繰り返し単位を含んで成るポリマーが挙げられる。

## 【化1】



30

(I)

前記式中、X<sup>1</sup>、Y<sup>1</sup>およびZ<sup>1</sup>はそれぞれ独立して、O、S、CR<sub>2</sub>、SiR<sub>2</sub>またはNR、より好ましくはOまたはS、最も好ましくはSであり、並びにRはそれぞれ独立して、アルキル、アリール、またはHである。前記式(I)の繰り返し単位に好ましい置換基は、C<sub>1~20</sub>アルキルであり、それは式(I)の繰り返し単位の1つ以上の環上に存在していてよい。

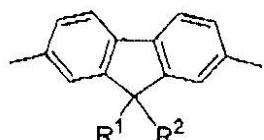
## 【0024】

より好ましくは、より長波長のポリマーは、任意に置換した式(I)の繰り返し単位と、以下のものから選択されるアリーレン共同繰り返し単位とを含んでなるコポリマーである：応用物理学会誌(J. Appl. Phys.)1996年、79、p.934に開示されているような任意に置換した1,4-フェニレン繰り返し単位；歐州特許第0842208号明細書に開示されているようなフルオレン繰り返し単位；例えば、マクロモレキュールズ(Macromolecules)2000年、33(6)、p.2016~2020に開示されているようなインデノフルオレン繰り返し単位；および例えば、歐州特許第0707020号明細書に開示されているようなスピロフルオレン繰り返し単位。置換基の例としては、C<sub>1~20</sub>アルキルまたはアルコキシなどの可溶化基；フッ素、ニトロ、もしくはシアノなどの電子吸引性基；および前記ポリマーのガラス転移温度(Tg)を高める置換基が挙げられる。4050

## 【0025】

特に好ましいアリーレン繰り返し単位は、任意に置換した2,7-結合フルオレン類、最も好ましくは下記の式(I)の繰り返し単位を含む。

## 【化2】



(II)

10

前記式中、R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>は独立して、水素、または任意に置換したアルキル、アルコキシ、アリール、アリールアルキル、ヘテロアリールおよびヘテロアリールアルキルから選択される。より好ましくは、R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>のうち少なくとも一方は、任意に置換したC<sub>4</sub>～<sub>20</sub>アルキルまたはアリール基を含む。

## 【0026】

これらのコポリマーは、本質的により長波長の電界発光有機材料、すなわち、それらの電界発光スペクトル（固体状態で測定されたもの）がそれらのフォトルミネッセンススペクトル（溶液で測定されたもの）と実質的に同じ状態であるものであって、フォトルミネッセンスにより青色光を放つ以外に、明らかに固体状態での凝集の結果として電界発光によって赤色光を放つ先行技術のトリアリールアミンホモポリマーとは異なる。本質的により長波長の電界発光有機材料を使用することで、非凝集型トリアリールアミンホモポリマーの従来技術の系とは異なり、繰り返し単位および／または層の厚さを適切に選択することによって発光色を制御することができる。

20

## 【0027】

他の好ましい材料としては、メルクOLEDマテリアルズ社(Merck OLED Materials GmbH)製の「スーパー・イエロー(Super Yellow)およびスーパー・オレンジ(Super Orange)」という名称で販売されているものが挙げられる。

## 【0028】

より長波長の電界発光有機材料は、架橋されていても、または架橋されていなくてもよい。好ましくは、それは、実質的に架橋されてない。

30

## 【0029】

より長波長の電界発光ポリマーは、好ましくは、以下により詳細に説明するように、このポリマーを、青色有機電界発光材料を堆積させるために使用される溶媒に実質的に不溶とするために、溶液から堆積した後で熱処理することによって形成される。この方法では、前記ポリマーの架橋を回避することができる。

## 【0030】

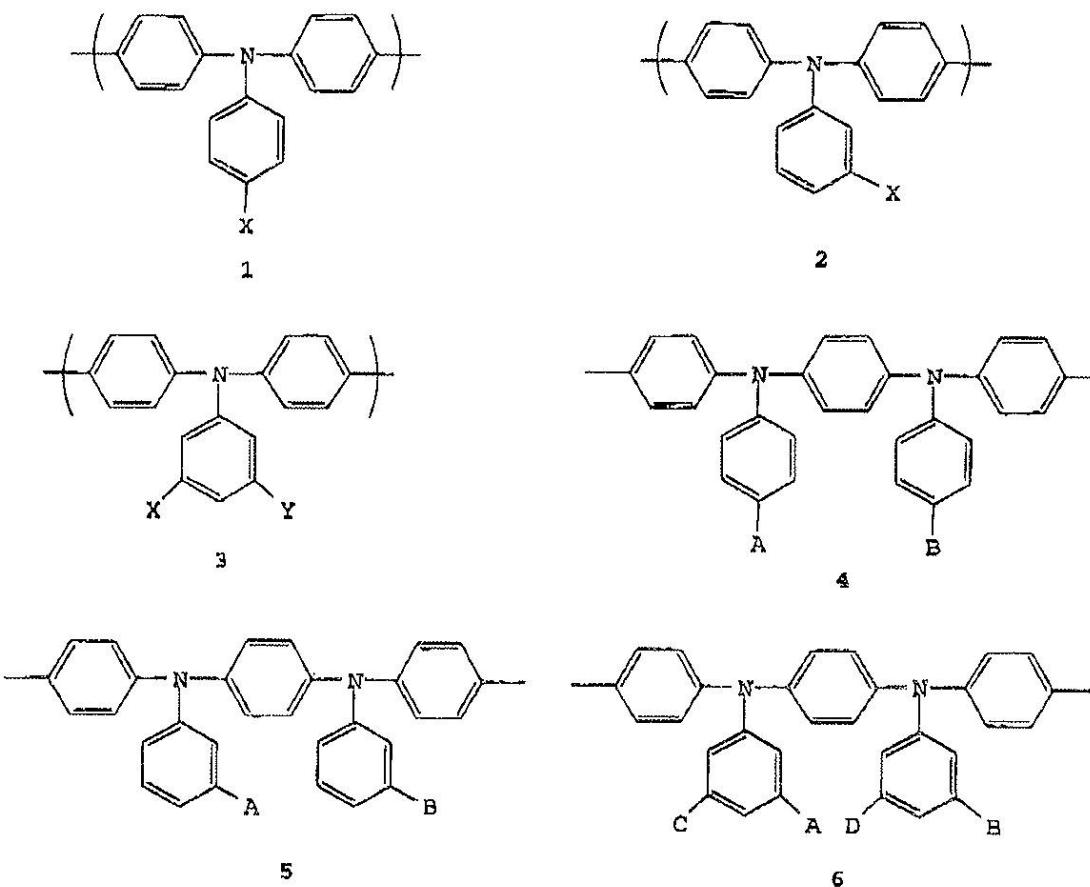
一般に、より長波長の電界発光有機材料の層の厚さは、5～50nm、好ましくは10～20nmの範囲である。この層の厚さが約10nmである場合に有用な装置が製造され得る。

40

## 【0031】

青色光電界発光材料は、好ましくは半導体ポリマーであり、トリアリールアミン繰り返し単位を含んでいてよい。特に好ましいトリアリールアミン繰り返し単位を下記の式1～6に示す。

## 【化3】



前記式中、X、Y、A、B、CおよびDは独立してHまたは置換基から選択される。より好ましくは、X、Y、A、B、CおよびDのうち1つ以上は独立して、任意に置換した、分枝または直鎖のアルキル基、アリール基、ペルフルオロアルキル基、チオアルキル基、シアノ基、アルコキシ基、ヘテロアリール基、アルキルアリール基、およびアリールアルキル基から成る群より選択される。最も好ましくは、X、Y、AおよびBはC<sub>1</sub>～C<sub>10</sub>アルキルである。前記式4の繰り返し単位が最も好ましい。前記繰り返し単位1～6のいずれか2つのフェニル基を直接結合によってまたは二価の部位(好ましくはヘテロ原子、より好ましくはOもしくはS)によって結合してもよい。これらの単位を結合する場合、前記単位1～3のポリマー主鎖中のフェニル繰り返し単位を結合することが最も好ましい。

## 【0032】

より好ましくは、青色電界発光ポリマーは、前記式1～6のうち1つ以上の繰り返し単位、最も好ましくは前記式4の繰り返し単位と、少なくとも1つのアリーレン繰り返し単位とを含むコポリマー、特に固有の青色電界発光コポリマーである。特に好ましいアリーレン繰り返し単位は、より長波長のエミッターに関して上述した通りである。電界発光材料それぞれが溶液処理可能なポリマーを含むことが好ましい。このことは、真空蒸着などの非溶液処理技術によって形成される装置と比較すると、前記装置をより簡易にかつより安価に製造する。

## 【0033】

好ましい配置では、より長波長の電界発光ポリマーの層は、アノードと青色光電界発光材料の層との間に配置される。より長波長の層は、青色光電界発光材料よりも小さなバンドギャップを有するため、青色光電界発光材料の層からの励起子または電子の移動を妨げない。青色有機電界発光材料の層内へのホール輸送を促進するために、より長波長の電界発光ポリマーは、前記式1～6より選択される1つ以上のホール輸送トリアリールアミン繰り返し単位、より好ましくは前記式1の繰り返し単位を含むことが好ましい。

## 【0034】

前記装置には、上記のものに加えて、更なる層を組み込んでもよい。例えば、アノードから発光材料へのホールの移動を促進するように、アノードと有機発光領域の間にホール輸送層を有利に配置してもよい。かかるホール輸送層としては、欧州特許第0901176号明細書および欧州特許第0947123号明細書に開示されているようなP E D T / P S S、または米国特許第5723873号明細書および米国特許第5798170号明細書に開示されているようなポリアリーレン類が挙げられる。P E D T / P S Sは、ポリスチレンスルホン酸ドープしたポリエチレンジオキシチオフェンである。他のホール輸送材料としては、P P Vおよびポリ(2,7-(9,9-ジ-n-オクチルフルオレン)-  
(1,4-フェニレン-(4-イミノ(安息香酸))-1,4-フェニレン))(B F A)が挙げられる。10

## 【0035】

電子移動材料をカソードと青色発光材料の間に配置してもよい。

## 【0036】

アノードは、あらゆる従来の材料から構成されてもよく、典型的には、酸化スズ、金または白金などの仕事関数の高い金属、および酸化インジウムスズ(I T O)が挙げられる。酸化インジウムスズが好ましい。

## 【0037】

カソードもまた、あらゆる従来の材料から構成されてもよく、また複合カソードであってもよい。本発明において有用な典型的なカソードは、フッ化リチウム/カルシウム/アルミニウムカソードである。20

## 【0038】

本発明の第2の態様によれば、有機発光装置の製造方法であって、前記方法が、アノードを提供すること、任意に、前記アノードの上にホール輸送層を形成すること、前記アノードまたは前記ホール輸送層の上に、第1波長で光を本質的に放射する第1電界発光有機材料の層を堆積させること、前記第1電界発光有機材料の層の上に第2電界発光有機材料の層を堆積させること、およびカソードを提供すること

を含んで成り、それによって前記カソードと前記アノードとの間に、青色光電界発光有機材料の層およびより長波長の電界発光有機材料の層を含んで成る有機発光領域が形成され、ここで、前記青色光材料の層とより長波長の材料の層は、前記有機発光領域が、3000~9000Kで黒体によって放射される白色光と同等のCIE x座標、および前記黒体によって放射される前記白色光のCIE y座標の0.05以内のCIE y座標を有する領域に含まれる白色光を放射するように選択される、前記有機発光装置の製造方法が提供される。30

## 【0039】

本発明の方法では、アノードの上、またはホール輸送層がアノードの上に形成される場合はそのホール輸送層の上に堆積させる第1電界発光有機材料は、より長波長の電界発光有機材料の層または青色光電界発光有機材料の層のいずれかである。とはいって、第1電界発光有機材料が、より長波長の電界発光有機材料であることが好ましい。40

## 【0040】

有利には、第1電界発光有機材料の層を溶液から堆積させて、加熱する。次に、第2有機材料の層を、第1電界発光有機材料が可溶である溶媒から堆積させる。好ましくは有機材料のいずれかがポリマーであり、より好ましくは両方の有機材料がポリマーである。

## 【0041】

この方法によれば、好ましくは、より長波長の電界発光ポリマーの層である「中間層」が形成される。好適には、この中間層の堆積工程は、堆積した層を加熱することによって実施して、好ましくは架橋が実質的に存在しない加熱した層を形成する。50

**【 0 0 4 2 】**

本発明による中間層の堆積は、有機発光領域内で組み合わせた2つの層からの発光が白色光をもたらすように、発光材料の異なる層と隣接する発光層の形成を可能にする。このことは、より長波長の電界発光ポリマーと青色光電界発光ポリマーがいずれも共通溶媒に溶解する場合であっても、中間層堆積技術を用いることで可能となる。

**【 0 0 4 3 】**

本発明の実施形態によれば、中間層の厚さを利用して発光を調節することで、できる限り白色に近い色を達成することができる。

**【 0 0 4 4 】**

本発明による方法は、フラットパネルディスプレイ用のバックライトの製造、並びに他の照明用途（特に間接照明の光源）に使用することができる。10

**【 0 0 4 5 】**

本発明の第3の態様によれば、青色光電界発光材料とより長波長の電界発光材料の両者を堆積させるのに好適な溶液が提供される。従って、溶液は、好適な溶媒または溶媒の混合物中に少なくとも第2発光材料と合わせて第1発光材料も含む。一方または両方の発光材料が、ホール輸送材料などの電荷移動材料の機能を発揮する場合もある。

**【 0 0 4 6 】**

発光材料のうち一方または両方を適切に選択することによって、堆積後に第1および第2発光材料が相分離して2層の装置を形成することが分かった。発光材料のうち一方がホール輸送材料としても機能する場合、ホール輸送材料が相分離してホール輸送層を形成し、そして少なくとも一つの別の発光材料がそのホール輸送層の上に別の層を形成する。20

**【 0 0 4 7 】**

典型的に、第1および第2発光材料を含む溶液を、導電性材料を含む導電層の上に堆積させる。この場合、第1および第2発光材料のうち一方は、典型的に、相分離を促進させるための極性置換基を含んで成る。

**【 0 0 4 8 】**

好ましくは、第1発光材料は、青色光電界発光材料であって、ホール輸送層を形成するためにホール輸送材料から選択される。そのような場合、第2発光材料は、より長波長の電界発光材料であって、ホール輸送層の上に層を形成する。

**【 0 0 4 9 】**

あるいは、第1発光材料は、より長波長の電界発光材料であって、ホール輸送層を形成するためにホール輸送材料から選択される。このような場合、第2発光材料は、青色光電界発光材料であって、ホール輸送層の上に層を形成する。30

**【 0 0 5 0 】**

溶液処理、特にインクジェット印刷を最適化するために、溶媒混合物が前記溶液中に存在していてもよい。

**【 0 0 5 1 】**

当然のことながら、第3の態様では、第1発光材料および少なくとも第2発光材料が共通溶媒に溶解される必要がある。好ましくは、非極性溶媒を使用することから、前記極性置換基は、含まれる場合、当該置換基を結合した（it is bound to）材料を非極性溶媒に不溶化させずに極性溶媒に可溶化するのに十分に低い濃度で存在する中性の極性置換基であることが好ましい。これに対して、荷電した極性置換基は、比較的低濃度でもこの材料を非極性溶媒に不溶化させる可能性がある。40

**【 0 0 5 2 】**

相分離を実現するためには、第1発光材料は、導電性材料を含む層などの下地層の材料と親和性を示すべきであり、そして少なくとも第2発光材料は下地層の材料と親和性を示さないかまたは弱い親和性を示すべきであることが分かる。このために、下地層の材料（例えば、導電性材料）が酸を含有する場合、第1発光材料は、好ましくは極性置換基を含有し、またこの極性置換基は、好ましくは下地材料と反応して前記酸の共役塩基を形成する。50

**【 0 0 5 3 】**

導電性材料は、有機導電性材料、例えば、本明細書の別の箇所に定義しているような有機ホール注入材料を含んでいてよい。

**【 0 0 5 4 】**

一実施形態では、第1発光材料は、導電性材料が極性基を含有しつつ第1発光材料が極性置換基を含有する場合に、導電性材料と親和性を示すことが分かった。

**【 0 0 5 5 】**

好ましい中性の極性置換基は、独立して、当該技術分野において既知の脂肪族または脂環式の酸素 - 、窒素 - 、硫黄 - 、およびリン - 含有基から選択することができる。例えば、酸素含有基としては、エーテル（特にポリエーテル）、エステル、および（ポリアルデヒドを包含する）アルデヒドが挙げられる。窒素含有基としては、アミン（第一級、第二級、および第三級）、シアノ、アミド、およびイミンが挙げられる。ポリアミン類が好ましい。硫黄含有基としては、チオフェン、チオール、およびメルカプトが挙げられる。リン含有基としては、ホスフィンおよびホスファゼンが挙げられる。好ましい極性基は、アミン類、特にモルホリンなどの環状アミン類、および少なくとも3つの酸素原子を含むエーテル類である。その他の好ましい極性基としては、アルキルピリジン類などの非共役ピリジン類が挙げられる。

10

**【 0 0 5 6 】**

中性の極性置換基は、堆積後にその場で荷電され得るため、荷電した極性置換基となる場合がある。

20

**【 0 0 5 7 】**

親和性は、導電性材料内の極性基の数および位置並びに第1発光材料内の極性置換基の数および位置を選択することによって最適化することができる。この点に関して、第1発光材料がポリマーを含む場合、ポリマー主鎖にぶら下がる側鎖または側基が極性置換基を含むことが望ましい。好ましくは、前記側鎖または側基はポリマー主鎖と結合していない。この実施形態では、導電性材料は、好ましくは有機導電性材料、より好ましくは有機導電性ポリマー、より好ましくは好適な電荷平衡ドーパントでドーピングしたP E D Tから構成される。電荷平衡ドーパントは酸性であってよい。電荷平衡ドーパントはポリアニオンであってもよい。好ましくは、電荷平衡ドーパントは、スルホン酸、例えばP E D T導電性ポリマーを酸性の極性P S S基と混合する場合はポリ（スチレンスルホネート）（P S S）を含む。

30

**【 0 0 5 8 】**

第1発光材料は、好ましくは、上述のようなモルホリン置換基などのアルキルアミン置換基を含む。

**【 0 0 5 9 】**

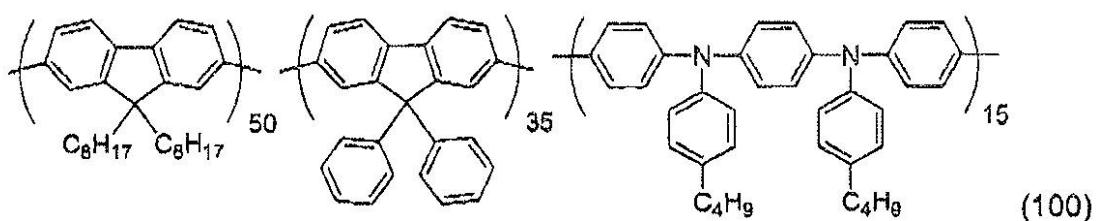
別の実施形態では、下地層の表面は、本発明の第3の態様によるポリマーブレンドの堆積が下地層の表面で非極性材料と相分離するように下地層の表面を疎水性にするために、第1発光材料および少なくとも第2発光材料を含む溶液を堆積させる前に処理する。この技術により、相分離したブレンドは、非極性のホール輸送第1発光材料と、極性置換基（例えば、モルホリン）を含む第2発光材料とを用いて形成され得る。あらゆる好適な既知の表面処理（例えば、クロロシラン類による処理）を利用しててもよい。

40

**【 0 0 6 0 】**

この実施形態では、ホール輸送材料は、発光（好ましくは青色発光）できるのであれば、あらゆる好適な材料、特に本明細書に記載のあらゆる材料であってよい。好ましい青色光を発光するホール輸送ポリマーは、下記の式100を有する。

## 【化4】



## 【0061】

あらゆる好適な発光材料を、第2発光層中の電気活性なポリマーとして使用することができる。

## 【0062】

本発明の第3の態様は、更に、本発明の第3の態様による方法で得られたまたは得られる有機電子装置も提供する。容易に分かるように、本発明の第3の態様は、本発明の第1および第2の態様により説明されたような白色光と考えられ得る第1および第2発光層からの複合発光を提供する。

## 【0063】

本発明の第1、第2、または第3の態様の第1の実施形態では、より長波長の電界発光材料は、黄色光、赤色光、または緑色光を放つことができる。黄色の場合、CIE座標は、約(0.45, 0.5)または好ましくは(0.5, 0.45)である。

## 【0064】

本発明の第1、第2、または第3の態様の第2の実施形態では、より長波長の電界発光材料は、ホール輸送が可能な緑色光電界発光(好ましくは蛍光)材料である。この第2の実施形態では、白色発光は、第1CIE座標を有する光と、第2CIE座標を有する光と、第3CIE座標を有する光との混合から本質的に成る。第3CIE座標を有する光は、好ましくは、赤色光電界発光(好ましくは蛍光)材料から放たれた赤色光である。好ましくは、赤色光電界発光材料はポリマーである。好ましくは、赤色光電界発光材料は、青色光電界発光材料と単一の層内で混合される。好ましくは、当該赤色光電界発光材料および青色光電界発光材料は単一溶液から同時に堆積させる。赤色電界発光材料において、前記単一ポリマー中に存在すべき好ましい繰り返し単位は、本明細書の別の場所に開示している通りである。青色光電界発光材料において、前記単一ポリマー中に存在すべき好ましい繰り返し単位は、本明細書の別の場所に定義した通り、特に前記式1~6である。

## 【0065】

緑色光電界発光材料は、好ましくはポリマー、より好ましくは共役ポリマーである。緑色光電界発光材料において、前記ポリマー中に存在すべき好ましい繰り返し単位は、前記式(I)を除く以外は本明細書に開示している通りである。この実施形態では、緑色光電界発光材料は青色(および赤色)光電界発光材料から空間的に離れていることが分かる。驚くことに、緑色電界発光材料を青色(および赤色)電界発光材料から空間的に離すことにより、本発明者らは、緑色光電界発光材料の崩壊がかなり軽減されることを見出した。そのため、前記装置は、赤色と緑色と青色の3成分ブレンドまたは赤色光と緑色光と青色光を同時に発光できる単一の電界発光ポリマーを用いた装置と比較して、軽減されたカラーシフトと、より長い寿命とを示す。

## 【0066】

第2の実施形態に関して赤色電界発光材料、緑色電界発光材料、および青色電界発光材料に好ましい材料は、本発明の別の場所に記載している通りである。

## 【0067】

白色光を作り出す物理的な方法は、緑色光電界発光材料の電子特性に左右される。具体的には、それは、青色/赤色発光層のLUMO準位を基準にして緑色発光層のLUMO準位に依存する。

10

20

30

40

50

## 【0068】

ケース1) 緑色のLUMOが青色および/または赤色のLUMOよりも浅い場合

電子は、一般に、青色光および赤色光電界発光材料を含む層に閉じ込められている。緑色発光は、青色光電界発光材料から緑色光電界発光材料へのフォースター転移によって生じる。赤色発光は、妨げられていない緑色層を通過する。その結果、観察される色は、赤色と緑色と青色を混合したもの、すなわち白色である。

## 【0069】

ケース2) 緑色のLUMOが青色および/または赤色のLUMOよりも深い場合

電子とホールは緑色層内に存在し、そのため緑色光は主に再結合によって発光する。その結果、観察される色は、赤色と緑色と青色を混合したもの、すなわち白色である。

10

## 【0070】

本発明の第1、第2、および第3の態様の第3の実施形態では、より長波長の電界発光材料は、燐光材料、好ましくは赤色光燐光材料である。この第3の実施形態では、白色発光は、第1CIE座標を有する光と、第2CIE座標を有する光と、第3CIE座標を有する光との混合から本質的に成る。第3CIE座標を有する光は、好ましくは、ホールを青色光電界発光材料へ移動することができ、しかもホールと電子を燐光材料へ移動させることができ、電界発光母材から発光される。これに関し、燐光材料は電界発光母材内のドーパントとして含まれている。好ましくは、当該燐光材料および電界発光母材は、单一溶液から同時に堆積させる。ドーパント燐光材料は、電界発光母材中に分散した別個の材料（すなわち、物理的なブレンド）であってもよく、または本明細書の別の場所に記載した通り、電界発光母材と化学的に結合されていてもよい。

20

## 【0071】

より長波長の電界発光材料が赤色光燐光材料であって、青色光電界発光材料から空間的に離れている場合、本発明者らは、このことが、青色光の一部を低周波数側の赤色光へ変換すること、すなわち、全体として白色の発光を作り出すことという燐光材料の利点を有することを見出した。更に、このことは、赤色、青色の2成分ブレンドを用いた装置と比較して、電位差によってカラーシフトが軽減されるという利点を有する。

## 【0072】

燐光材料、特に赤色光燐光材料に好ましい材料や、第3の実施形態に関して説明したような青色光電界発光は、本明細書の別の場所に開示した通りである。

30

## 【0073】

電界発光母材に言及すると、これは、好ましくは、青色の光を放つ。電界発光母材に好適な材料は、本明細書の別の場所に開示した通りであり、特に前記式1～6に示す通りである。

## 【0074】

好ましくは、電界発光材料、特に赤色光電界発光材料が燐光性である場合、それは、コアを含んで成る燐光デンドリマーと、表面基(surface groups)を含んで成る1つ以上の共役デンドロンを含む。しかしながら、これは絶対必要なものではなく、また燐光性の電界発光材料は、燐光性の小さな分子（例えば、3つの二座配位子で囲まれた金属(M)）または燐光性の直鎖ポリマーを含んでいてもよい。

40

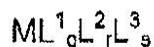
## 【0075】

デンドリマーの溶液処理は、処理特性を制御する表面基が発光性コアとは無関係に変性できることから、非常に適している。

## 【0076】

燐光材料、特に赤色光燐光材料は、金属錯体を含んでいてもよい。好ましい金属錯体は、下記の式(7)の任意に置換した錯体を含む。

## 【化5】



(7)

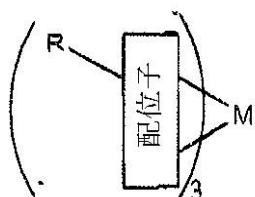
前記式中、Mは金属であり、 $L^1$ 、 $L^2$ および $L^3$ の各々は配位子であり、qは整数であり、rおよびsはそれぞれ独立して、0または整数であり、並びに( $a \cdot q$ ) + ( $b \cdot r$ ) + ( $c \cdot s$ )の和はM上で利用できる配位部位の数と等しく、ここで、aは $L^1$ 上の配位部位の数であり、bは $L^2$ 上の配位部位の数であり、およびcは $L^3$ 上の配位部位の数である。

10

## 【0077】

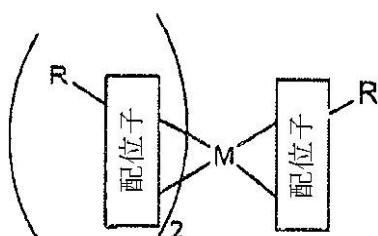
赤色光燐光材料は、下記の式(8)または(9)を有していてもよい。

## 【化6】



(8)

20



(9)

前記式中、Mは金属であり、そしてRは、H、置換基、または表面基を含むデンドロンを表す。

30

## 【0078】

赤色光燐光材料が小さな分子である場合、Rは、Hまたは置換基を表す。置換基の例としては、C<sub>1~20</sub>アルキルまたはアルコキシなどの可溶化基；フッ素、ニトロ、もしくはシアノなどの電子吸引性基；および前記ポリマーのガラス転移温度(T<sub>g</sub>)を高める置換基が挙げられる。

## 【0079】

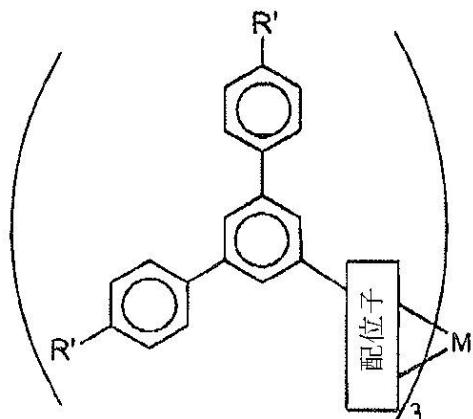
Rは、赤色発光材料がデンドリマーであるように表面基を有するデンドロンを表してもよい。

## 【0080】

好ましくは、赤色燐光デンドリマーは下記の式(10)または(11)を有する。

40

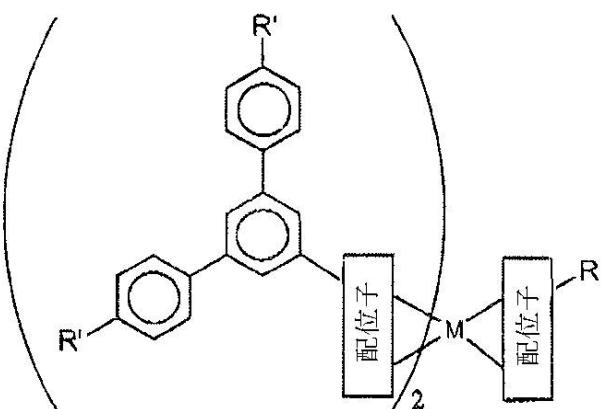
## 【化7-1】



(10)

10

## 【化7-2】



(11)

20

前記式中、 $M$ および $R$ は、先に定義した通りであり、並びに $R'$ は、H、または表面基を表す。

30

## 【0081】

表面基 $R'$ の例としては、C<sub>1</sub>～C<sub>20</sub>アルキルまたはアルコキシなどの可溶化基；フッ素、ニトロ、もしくはシアノなどの電子吸引性基；および前記ポリマーのガラス転移温度( $T_g$ )を高める置換基が挙げられる。

## 【0082】

好ましくは、 $R'$ は、アルキルまたはアルコキシ基、好ましくはC<sub>1</sub>～C<sub>20</sub>アルキルまたはアルコキシ、より好ましくはを表す。

## 【0083】

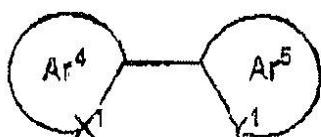
$M$ は、あらゆる好適な金属、特にd-ブロック金属、例えば2列目から3列目のもの、すなわち、39番～48番元素および72番～80番元素、とりわけルテニウム、ロジウム、パラジウム、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、タングステン、および金を表すことができる。好ましくは、 $M$ はイリジウム(Ir)を表す。

40

## 【0084】

前記式7～11において、「配位子」または「L」は、下記の式(12)のポルフィリンまたは二座配位子などの炭素または窒素供与体を表してもよい。

## 【化8】



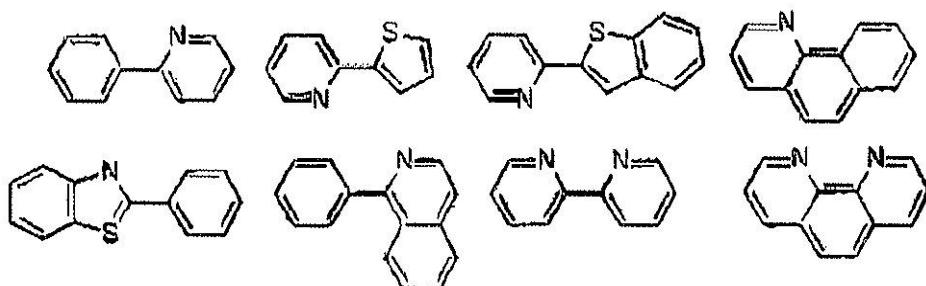
(12)

前記式中、Ar<sup>4</sup>およびAr<sup>5</sup>は、同一または異なっていてよく、また独立して、任意に置換したアリールまたはヘテロアリールから選択され、X<sup>1</sup>およびY<sup>1</sup>は、同一または異なるっていてよく、また独立して、炭素または窒素から選択され、並びにAr<sup>4</sup>およびAr<sup>5</sup>は、互いに融合していてよい。X<sup>1</sup>が炭素であり、そしてY<sup>1</sup>が窒素である配位子が特に好ましい。

## 【0085】

二座配位子の例を以下に表す。

## 【化9】



10

20

## 【0086】

Ar<sup>4</sup>およびAr<sup>5</sup>はそれぞれ、1つ以上の置換基を担持していてよい。特に好ましい置換基としては、国際公開第02/45466号パンフレット、国際公開第02/44189号、米国特許出願公開第2002/117662号明細書および米国特許出願公開第2002/182441号明細書に開示されているような、錯体の発光を青方偏移するために用いられてよいフッ素またはトリフルオロメチル；特開2002-324679号公報に開示されているようなアルキルまたはアルコキシ基；国際公開第02/81448号パンフレットに開示されているように、発光材料として使用されるときに錯体へのホール輸送を助けるために用いられてよいカルバゾール；国際公開第02/68435号パンフレットおよび欧州特許第1245659号明細書に開示されているような、別の基を結合する場合に配位子を官能化するのに役立ち得る臭素、塩素、またはヨウ素；並びに国際公開第02/66552号パンフレットに開示されているように、金属錯体の溶液処理性を実現するかまたはそれを高めるために使用されてよいデンドロンが挙げられる。

## 【0087】

d-ブロック元素と共に使用するのに好適な他の配位子としては、ジケトネート類、特にアセチルアセトネート(acac)；トリアリールホスフィン類およびピリジンが挙げられ、これらはそれぞれ置換されていてよい。

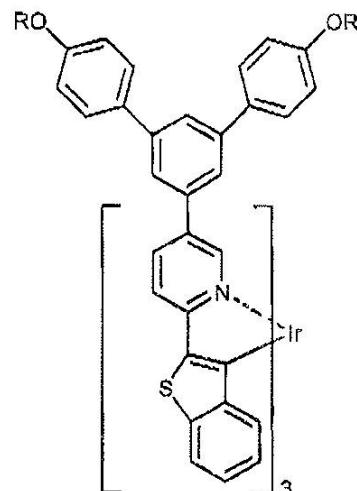
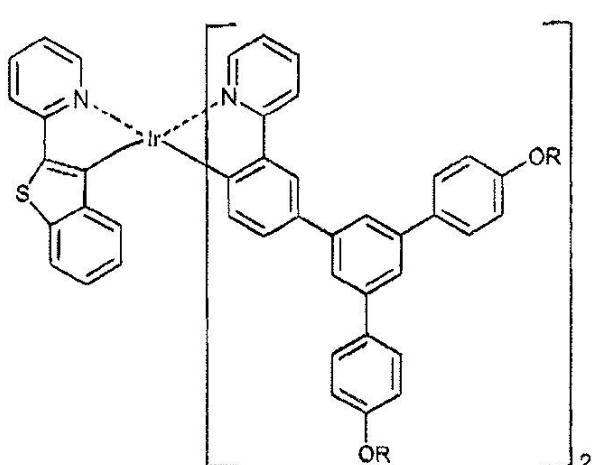
## 【0088】

赤色熒光デンドリマーは、下記の式(13)または(14)を有していてよい：

30

40

## 【化10】



前記式中、Rは、2-エチル、ヘキシルである。

## 【0089】

あらゆる好適な母材を赤色光電界発光材料と共に使用してもよい。母材は、小さな分子またはポリマーであってよい。母材はポリマーであることが好ましく、より好ましくは共役ポリマーである。

20

## 【0090】

ポリマーホスト(polymer host)中の赤色光電界発光材料の濃度は、ポリマーホストからの発光が視認できないように十分であってよい。ポリマーホスト中の赤色発光材料の濃度は、5重量%を超え、好ましくは7.5重量%を超え、より好ましくは10重量%を超えてよい。

## 【0091】

ポリマーホスト中の赤色光電界発光材料の濃度は、ポリマーホストからの発光が視認できるように十分であってよい。

30

## 【0092】

母材と金属錯体は、物理的なブレンドの形態で組み合わされていてよい。あるいは、金属錯体は、母材に化学結合されていてよい。ポリマーホストの場合、金属錯体は、ポリマー主鎖に結合した置換基として化学結合されていても、ポリマー主鎖内の繰り返し単位として組み込まれていても、あるいは例えば欧州特許第1245659号明細書、国際公開第02/31896号パンフレット、国際公開第03/18653号パンフレットおよび国際公開第03/22908号パンフレットに開示されているように、ポリマーの末端基として供給されてもよい。

## 【0093】

当該技術分野では多数のホストが説明されており、CBPとして既知の4,4'-ビス(カルバゾル-9-イル)ビフェニル)およびアイカイ(Ikai)ら(アプライド・フィジクス・レター(Appl. Phys. Lett.)、79、第2号、2001年、p.156)に開示されているTCTAとして既知の(4,4',4''-トリス(カルバゾル-9-イル)トリフェニルアミン)などの「小さな分子」ホスト;並びにMTDATAとして既知のトリス-4-(N-3-メチルフェニル-N-フェニル)フェニルアミンなどのトリアリールアミン類が挙げられる。ホモポリマーは、ホストとして既知であり、特に、例えばアプライド・フィジクス・レター、2000年、77(15)、p.2280に開示されているポリ(ビニルカルバゾール);合成金属(Synth. Met.)、2001年、116、p.379、フィジカル・レビュー(Phys. Rev.)B、2001年、63、p.235206およびアプライド・フィジクス・レター、2003年、82(7)、p.1006に開示

40

50

されているポリフルオレン類；先端材料(Adv. Mater.)、1999年、11(4)、p. 285に開示されているポリ[4-(N-4-ビニルベンジルオキシエチル,N-メチルアミノ)-N-(2,5-ジ-tert-ブチルフェニルナフタルイミド)]；ならびに材料化学会誌(J. Mater. Chem.)、2003年、13、p. 50~55に開示されているポリ(パラフェニレン類)としても既知である。

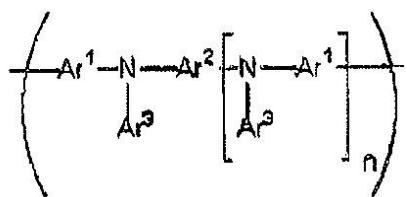
## 【0094】

様々な青色光蛍光材料が当該技術分野で知られている。青色光蛍光材料は、共役半導体ポリマーを含んでいてよい。共役半導体ポリマーは、2つ以上の異なる繰り返し単位を含んで成るコポリマーであってよい。共役ポリマーは、直鎖ポリマーであっても、または分枝ポリマーであってもよい。共役ポリマーは、1つ以上の異なるアリールまたはヘテロアリール繰り返し単位を含んでいてもよい。10

## 【0095】

青色蛍光ポリマーの例は、任意に置換したアリーレンまたはヘテロアリーレン繰り返し単位(例えば、フルオレン、インデノフルオレン、またはスピロビフルオレン)と、任意に置換したトリアリールアミン繰り返し単位、例えば、下記式(15)の繰り返し単位とを含んで成るコポリマーである。

## 【化11】



10

20

(15)

前記式中、 $n = 0$ または1、および $Ar^1$ 、 $Ar^2$ 、および $Ar^3$ はそれぞれ独立して、置換したまたは非置換のアリール基またはヘテロアリール基を表す。

## 【0096】

好ましくは、 $Ar^1$ はフェニレンである。

## 【0097】

30

好ましくは、 $n$ は0である。

## 【0098】

好ましくは、 $Ar^2$ は1,4-フェニレンまたは4,4'-ビフェニレンである。

## 【0099】

$n$ が0のとき、 $Ar^2$ は好ましくは1,4-フェニレンである。 $n$ が1のとき、 $Ar^2$ は好ましくは1,4-フェニレンまたは4,4'-ビフェニレンである。

## 【0100】

好ましくは、 $Ar^3$ はフェニルである。 $Ar^3$ は置換していても非置換であってもよく、好ましくは、 $Ar^3$ は可溶化基で置換されており、より好ましくは、任意に置換されたC<sub>1~20</sub>アルキルまたはC<sub>1~20</sub>アルコキシである。40

## 【0101】

ホール輸送繰り返し単位または電子移動繰り返し単位などの追加の繰り返し単位が青色蛍光ポリマー中に存在していてよい。この種の青色蛍光ポリマーは、例えば、国際公開第02/092723号パンフレットに開示されている。

## 【0102】

蛍光青色発光材料は、金属錯体を含んでいてよい。

## 【0103】

蛍光青色発光材料は、小さな分子であってよい。

## 【0104】

緑色光電界発光材料も当該技術分野では既知である。50

## 【0105】

緑色光電界発光材料は、共役半導体ポリマーを含んでいてよい。共役半導体ポリマーは、2つ以上の異なる繰り返し単位を含むコポリマーであってよい。共役ポリマーは、直鎖ポリマーであっても、分枝ポリマーであってもよい。ポリマーは蛍光性であってよい。共役ポリマーは、1つ以上の異なるアリールまたはヘテロアリール繰り返し単位を含んでいてよい。

## 【0106】

緑色蛍光ポリマーの一例は、任意に置換したアリーレンまたはヘテロアリーレン繰り返し単位（例えばフルオレン、インデノフルオレン、またはスピロビフルオレン）と、例えばマクロモレキュールズ、2002年、35、p. 6094~6100に開示されているような任意に置換した4,7-結合2,1,3ベンゾチアジアゾール繰り返し単位とを含んで成るコポリマーである。ホール輸送繰り返し単位または電子移動繰り返し単位などの追加の繰り返し単位も緑色蛍光ポリマー中に存在していてよい。10

## 【0107】

緑色光電界発光体は、金属錯体を含んでいてよい。金属錯体は燐光性であってよい。

## 【0108】

緑色光電界発光材料は小さな分子であってよい。

## 【0109】

好ましい緑色蛍光金属錯体、緑色燐光金属錯体、および青色蛍光金属錯体は、先に定義したような前記式(7)の任意に置換した錯体を含む。緑色蛍光金属錯体、緑色燐光金属錯体、および青色蛍光金属錯体は、M, L<sup>1</sup>, L<sup>2</sup>およびL<sup>3</sup>を適切に選択することにより入手され得る。20

## 【0110】

Mは、重元素を表してもよい。重元素Mは、強いスピン軌道結合を引き起こして、迅速な系間の架橋、および三重項状態からの発光（燐光）を可能にする。好適な重元素Mとしては、以下のものが挙げられる：

- セリウム、サマリウム、ユーロピウム、テルビウム、ジスプロシウム、ツリウム、エルビウム、ネオジムなどのラントニド金属、並びに
  - d-ブロック金属、特に2列目および3列目のもの、すなわち、39番~48番元素および72番~80番元素であって、特にルテニウム、ロジウム、パラジウム、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、および金。
- 30

## 【0111】

f-ブロック金属に好適な配位基としては、酸素または窒素供与体系、例えば、カルボン酸類、1,3-ジケトネット類、ヒドロキシカルボン酸類、アシルフェノール基およびイミノアシル基を包含するシップ塩基類が挙げられる。既知のように、発光ラントニド金属錯体は、金属イオンの最初の励起状態よりも高い、三重項励起エネルギー準位を有する増感(sensitizing)基(単数または複数)を必要とする。発光は、金属のf-f遷移から生じるため、発光色は金属の選択によって決定される。シャープな発光は、一般に幅が狭く、結果としてディスプレイ用途に有用な単色発光をもたらす。

## 【0112】

d-ブロック金属は、先に定義したようなポルフィリンまたは前記式(12)の二座配位子のような炭素または窒素供与体を有する有機金属錯体を形成する。

## 【0113】

d-ブロック元素と共に使用するのに適した他の配位子としては、ジケトネット類、特にアセチルアセトネット(acac); トリアリールホスфин類およびピリジンが挙げられ、これらはそれぞれ置換されていてよい。

## 【0114】

主族金属錯体は、配位子に基づく発光または電荷移動発光を発現する。これらの錯体では、発光色は、配位子並びに金属の選択によっても決定される。

## 【0115】

50

母材と金属錯体は、物理的なブレンドの形態で組み合わされてよい。あるいは、金属錯体を母材に化学結合してもよい。ポリマーホストの場合、金属錯体はポリマー主鎖に結合した置換基として化学結合していてもよく、繰り返し単位としてポリマー主鎖に組み込まれていてもよく、または例えば欧州特許第1245659号明細書、国際公開第02/31896号パンフレット、国際公開第03/18653号パンフレットおよび国際公開第03/22908号パンフレットに開示されているようにポリマーの末端基として供給されてもよい。

#### 【0116】

広範な蛍光性低分子量金属錯体が知られており、また有機発光装置[例えば、マクロモレキュール・シンポジウム(Macromol. Sym.)、125(1997年)、p.1~48、米国特許第5,150,006号明細書、米国特許第6,083,634号明細書、および米国特許第5,432,014号明細書を参照のこと。]では、特にトリス-(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウムが実証されてきた。二価または三価の金属に好適な配位子としては、オキシノイド、例えば酸素-窒素もしくは酸素-酸素供与性原子を有するものが挙げられ、一般には置換基酸素原子を有する環窒素原子、あるいは置換基酸素原子を有する置換基窒素原子もしくは置換基酸素原子、例えば、8-ヒドロキシキノレートおよびヒドロキシキノキサリノル-10-ヒドロキシベンゾ(h)キノリナート(II)、ベンザゾール(III)、シップ塩基類、アゾインドール類、クロモン誘導体、3-ヒドロキシフラボン、並びにサリチラトアミノカルボキシレートおよびカルボン酸エステルなどのカルボン酸類が挙げられる。任意の置換基としては、発光色を変えることができる(ヘテロ)芳香族環上のハロゲン、アルキル、アルコキシ、ハロアルキル、シアノ、アミノ、アミド、スルホニル、カルボニル、アリール、またはヘテロアリールが挙げられる。

10

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0117】

本発明は、単なる例示として添付の図面を参照して更に詳細に説明するものである。

#### 【0118】

図1を参照すると、本発明による電界発光装置の構造は、透明なガラス基材またはプラスチック基材1、酸化インジウムスズ・アノード2、およびカソード4を含んで成る。電界発光層3は、アノード2とカソード4の間に供給される。

20

#### 【0119】

30

電荷移動層、電荷注入層、または電荷阻止層などの更なる層をアノード2とカソード3(cathode 3)の間に配置してもよい。

#### 【0120】

特に、アノード2と電界発光層3の間に配置した、ドーピングされた有機材料から形成した導電性ホール注入層を提供して、アノードから半導体ポリマー層(单数または複数)へのホール注入を助けることが望ましい。ドーピングした有機ホール注入材料の例としては、ポリ(エチレンジオキシチオフェン)(PEDT)、特に欧州特許第0901176号明細書および欧州特許第0947123号明細書に開示されているようなポリスチレンスルホネート(PSS)でドーピングしたPEDT、または米国特許第5723873号明細書および米国特許第5798170号明細書に開示されているようなポリアニリンが挙げられる。

40

#### 【0121】

アノード2と電界発光層3との間に配置したホール輸送層は、存在する場合、好ましくは5.5eV以下、より好ましくは約4.8~5.5eVのHOMO準位を有する。

#### 【0122】

電界発光層3とカソード4との間に配置した電子移動層は、存在する場合、好ましくは約3~3.5eVのLUMO準位を有する。

#### 【0123】

電界発光層3は、電界発光材料のみから成っていても、または電界発光材料と1つ以上の更なる材料とを組み合わせて構成されていてもよい。特に、電界発光材料は、例えば国

50

際公開第99/48160号パンフレットに開示されているようなホール輸送材料および/または電子移動材料とブレンドされてもよい。あるいは、電界発光材料は電荷移動材料と共に結合していてもよい。

#### 【0124】

本発明によれば、電界発光層は当然、少なくとも青色光電界発光有機材料を含まなければならない。

#### 【0125】

層3での使用に好適な電界発光ポリマーとしては、ポリ(p-フェニレンビニレン類)などのポリ(アリーレンビニレン類)、および;ポリフルオレン類、特に2,7-結合9,9-ジアルキルポリフルオレン類または2,7-結合9,9-ジアリールポリフルオレン類;ポリスピロフルオレン類、特に2,7-結合ポリ9,9-スピロフルオレン;ポリインデノフルオレン類、特に2,7-結合ポリインデノフルオレン類;ポリフェニレン類、特にアルキルもしくはアルコキシ置換ポリ-1,4-フェニレンなどのポリアリーレン類(*polyarylenes such as*)が挙げられる。このようなポリマーは、例えば、先端材料(Adv. Mater.)、2000年、12(23)、p.1737~1750およびその中の文献に開示されている。

10

#### 【0126】

カソード4は、電荷発光層への電子の注入を可能にする仕事関数を有する材料から選択される。カソードと電界発光材料との間で不都合な相互作用が生じる可能性などの他の因子も、カソードの選択に影響を及ぼす。カソードは、アルミニウム層のように単一材料から成っていてよい。あるいは、それは、複数の金属、例えば国際公開第98/10621号パンフレットに開示されているようなカルシウムとアルミニウムの二重層、国際公開第98/57381号パンフレット、アプライド・フィジクス・レター、2002年、81(4)、p.634および国際公開第02/84759号パンフレットに開示されているバリウム元素、または電子注入を助ける誘電物質(例えば、国際公開第00/48258号パンフレットに開示されているフッ化リチウムもしくはアプライド・フィジクス・レター、2001年、79(5)、p.2001に開示されているフッ化バリウム)の薄層を含んでいてもよい。電子を装置へ効率良く注入するために、カソードの仕事関数は、好ましくは3.5eV未満、より好ましくは3.2eV未満、最も好ましくは3eV未満である。

20

#### 【0127】

光学装置は水分と酸素に感応し易い。従って、基材は、好ましくは装置内への水分と酸素の進入を防ぐために良好なバリア特性を有する。基材は、通常はガラスであるが、特に装置に柔軟性が望まれる場合には、代替の基材を使用してもよい。例えば、基材は、米国特許第6268695号明細書に開示されているようなプラスチック(この公報には、代替プラスチック基材とバリア層が開示されている)、または欧州特許第0949850号明細書に開示されているような薄いガラスとプラスチックの積層物を含んでいてよい。

30

#### 【0128】

装置は、好ましくは、水分と酸素の進入を防ぐために封止材(図示せず)で封止されている。好適な封止材としては、ガラスシート、好適なバリア特性を有するフィルム(例えば、国際公開第01/81649号パンフレットに開示されているようなポリマーと誘電体を交互に積み重ねたもの)、あるいは例えば国際公開第01/19142号パンフレットに開示されているような気密性容器が挙げられる。基材または封止材に浸潤し得る大気中のあらゆる水分および/または酸素を吸収するためのゲッター材料が、基材と封止材との間に堆積させてもよい。

40

#### 【0129】

実用的な装置では、光を吸収できる(感光性装置の場合)かまたは発光できる(OLEDの場合)ように、少なくとも一方の電極は半透明である。アノードが透明な場合、アノードは、典型的に酸化インジウムスズから構成される。透明なカソードの例は、例えば、英国特許第2348316号明細書に開示されている。

50

## 【0130】

図1の実施形態は、最初に基材の上にアノードを形成し、続いて電界発光層とカソードを堆積させることによって形成される装置を表すが、本発明の装置は、最初に基材上にカソードを形成し、続いて電界発光層とアノードを堆積させることによって形成することもできる。

## 【0131】

共役ポリマー（蛍光性および／または電荷移動）

ポリマーは、好ましくは、アリーレン繰り返し単位から選択される第1繰り返し単位、特に応用物理学会誌、1996年、79、p.934に開示されているような1,4-フェニレン繰り返し単位；欧州特許第0842208号明細書に開示されているようなフルオレン繰り返し単位；例えばマクロモレキュールズ、2000年、33(6)、p.2016～2020に開示されているようなインデノフルオレン繰り返し単位；および例えば欧州特許第0707020号明細書に開示されているようなスピロフルオレン繰り返し単位を含んで成る。これらの繰り返し単位はそれぞれ、任意に置換されている。置換基の例としては、C<sub>1～20</sub>アルキルまたはアルコキシなどの可溶化基；フッ素、ニトロ、もしくはシアノなどの電子吸引性基；および前記ポリマーのガラス転移温度(T<sub>g</sub>)を高める置換基が挙げられる。

## 【0132】

特に好ましいポリマーは、任意に置換した2,7-結合フルオレン類、最も好ましくは前記式(I)の繰り返し単位を含んで成る。

## 【0133】

第1繰り返し単位を含んで成るポリマーは、それを用いる装置の層および共同繰り返し単位の性質に依存して、ホール輸送、電子移動、および発光のうち1つ以上の機能を提供することができる。

## 【0134】

特に、

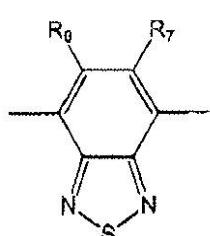
- 第1繰り返し単位のホモポリマー、例えば、9,9-ジアルキルフルオレン-2,7-ジイルのホモポリマーを利用して、電子移動を提供してもよい。
- 第1繰り返し単位とトリアリールアミン繰り返し単位、特に前記式1～6より選択される繰り返し単位を含んで成るコポリマーを利用して、ホール輸送および／または発光を提供してもよい。

## 【0135】

この種の特に好ましいホール輸送ポリマーは、第1繰り返し単位とトリアリールアミン繰り返し単位とのABコポリマーである。

- 電荷移動または発光のために、第1繰り返し単位とヘテロアリーレン繰り返し単位を含んで成るコポリマーを利用しててもよい。好ましいヘテロアリーレン繰り返し単位は、下記の式37～51より選択される。

## 【化12】



37

前記式中、R<sub>6</sub>およびR<sub>7</sub>は、同一であるかまたは異なっており、またそれぞれ独立して、水素、または置換基、好ましくはアルキル、アリール、ペルフルオロアルキル、チオア

10

20

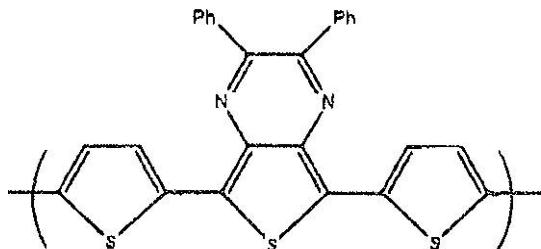
30

40

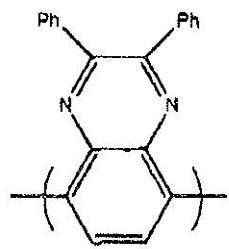
50

ルキル、シアノ、アルコキシ、ヘテロアリール、アルキルアリール、またはアリールアルキルである。製造し易いことから、R<sub>6</sub> および R<sub>7</sub> は好ましくは同一である。より好ましくは、これらは同一であって、それぞれフェニル基である。

## 【化13】



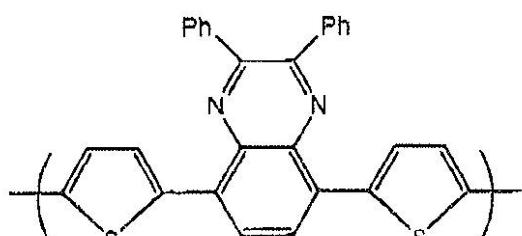
38



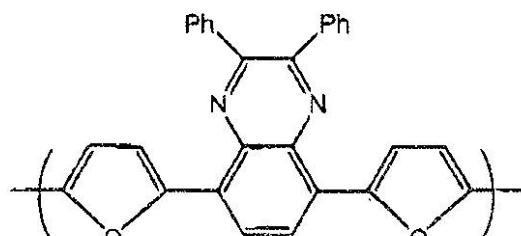
39

10

【化14】

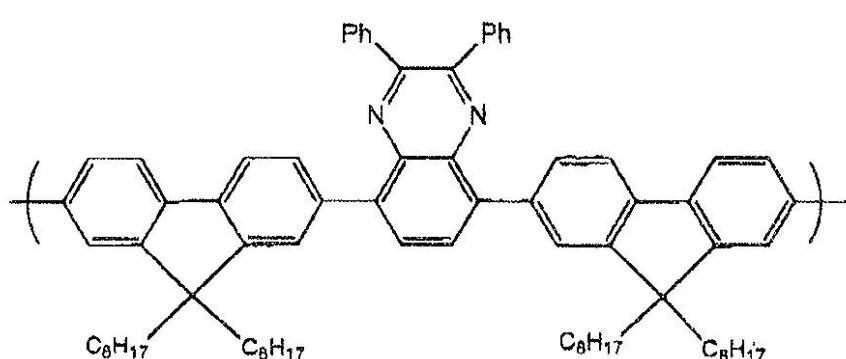


40



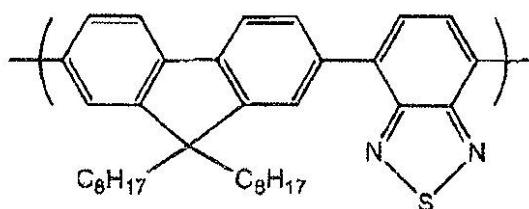
41

10



42

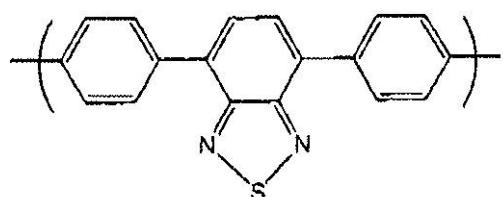
20



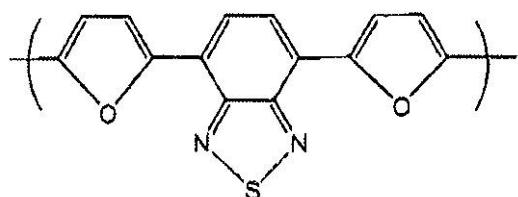
43

30

## 【化15】

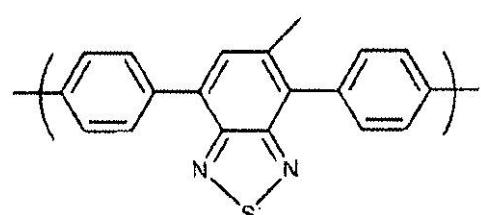


44

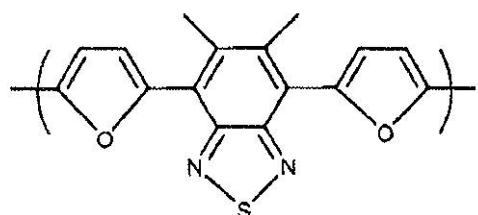


45

10

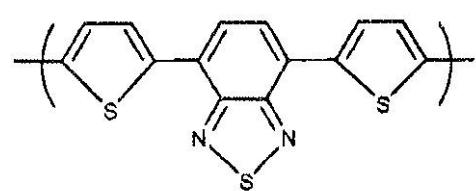


46

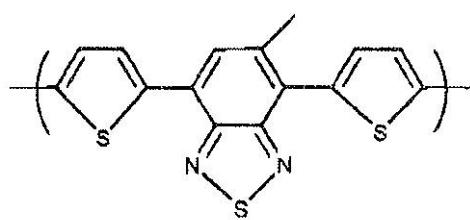


47

20

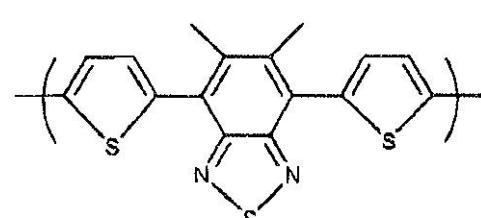


48



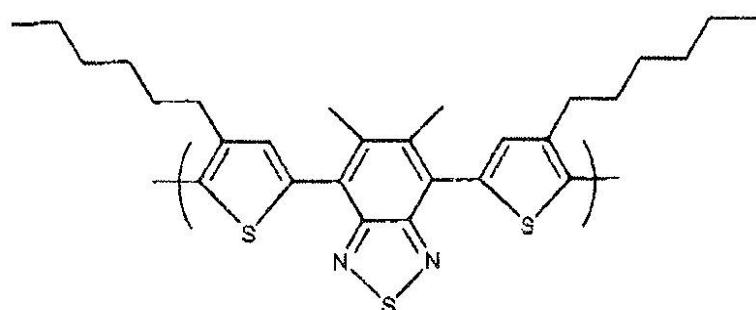
49

30



50

## 【化16】



51

40

電界発光コポリマーは、例えば国際公開第00/55927号パンフレットおよび米国特許第6353083号明細書に開示されているように、電界発光領域、およびホール輸送領域と電子移動領域のうち少なくとも一方を含んでいてよい。ホール輸送領域と電子移動領域のうち一方のみが提供される場合、電界発光領域がホール輸送機能および電子移動機能のうちのもう一方を提供してもよい。また一方で、2つの電界発光領域が提供される場合、一方がホール輸送層の機能を提供し、そしてもう一方が電子移動層の機能を提供してもよい。

#### 【0137】

かかるポリマー内の異なる領域は、米国特許第6353083号明細書のように、ポリマー主鎖に沿って提供されてもよく、または国際公開第01/62869号パンフレットのようにポリマー主鎖からぶら下がる基として提供されてもよい。10

#### 【0138】

##### 重合方法

これらポリマーの好ましい調製方法は、国際公開第00/53656号パンフレットに記載されているようなスズキ(Suzuki)重合、および例えばT.ヤマモト(T. Yamamoto)、「有機金属法によって調製された導電性でかつ熱安定性のpi-共役ポリ(アリーレン)類(Electrically Conducting And Thermally Stable pi-conjugated Poly(arylene)s Prepared by Organometallic Processes)」、高分子科学の進歩(Progress in Polymer Science)、1993年、17、p. 1153~1205に記載されているようなヤマモト(Yamamoto)重合である。これらの重合法はいずれも、金属錯体触媒の金属原子をモノマーのアリール基と離脱基との間に挿入する、「金属挿入」によって操作される。ヤマモト重合の場合は、ニッケル錯体触媒を使用し、スズキ重合の場合はパラジウム錯体触媒を使用する。20

#### 【0139】

例えば、ヤマモト重合による直鎖ポリマーの合成では、2つの反応性ハロゲン基を有するモノマーを使用する。同様に、スズキ重合の方法によれば、少なくとも1つの反応性基は、ボロン酸またはボロン酸エステルのようなホウ素誘導体基であり、またもう一方の反応性基はハロゲンである。好ましいハロゲンは、塩素、臭素、およびヨウ素であって、最も好ましくは臭素である。

#### 【0140】

そのため、この用途全体を通して表されるようにアリール基を含む繰り返し単位および末端基は、好適な脱離基を担持するモノマーから生じ得ると考えられる。30

#### 【0141】

スズキ重合は、レジオレギュラーコポリマー、ブロックコポリマー、およびランダムコポリマーを調製するために使用してよい。特に、ホモポリマーまたはランダムコポリマーは、一方の反応性基がハロゲンであり、そしてもう一方の反応性基がホウ素誘導体基であるときに調製され得る。あるいは、ブロックまたはレジオレギュラー(特にA B)コポリマーは、第1モノマーの反応性基が両方ともホウ素であり、第2モノマーの反応性基が両方ともハロゲンであるときに調製され得る。

#### 【0142】

ハロゲン化物の代替物として、金属挿入に関与し得る別の脱離基には、トシラート、メシラート、およびトリフラートが挙げられる。40

#### 【0143】

##### 溶液処理

単一ポリマーまたは複数のポリマーを溶液から堆積させて、層を形成することができる。ポリアリーレン類、特にポリフルオレン類に好適な溶媒としては、トルエンおよびキシリレンなどのモノ-またはポリ-アルキルベンゼン類が挙げられる。特に好ましい溶液堆積技術は、スピンドルティングおよびインクジェット印刷である。

#### 【0144】

スピンドルティングは、電界発光材料のパターニングが不要な装置、例えば照明用途ま50

たは簡単な白黒セグメント型ディスプレイに特に適している。

**【0145】**

インクジェット印刷は、情報量の多いディスプレイ、とりわけフルカラーディスプレイに特に適している。OLED類のインクジェット印刷は、例えば、欧州特許第0880303号明細書に記載されている。

**【0146】**

多層の装置を溶液処理により形成する場合、当業者は、一つの層を架橋してから後続の層を堆積させるか、またはこれらの層のうち最初の層を形成する材料が第2の層を堆積させるのに用いられる溶媒に溶解しないように、隣り合う層の材料を選択することによるなどの、隣り合う層同士の混合を防ぐ技術を心得ている。混合を防ぐための別の技術としては、層を溶液から堆積させた後で、その層を後続の層を堆積させるのに用いられる溶媒に実質的に不溶化するために熱処理することが挙げられる。この方法では、層の架橋を回避することができる。10

**【実施例1】**

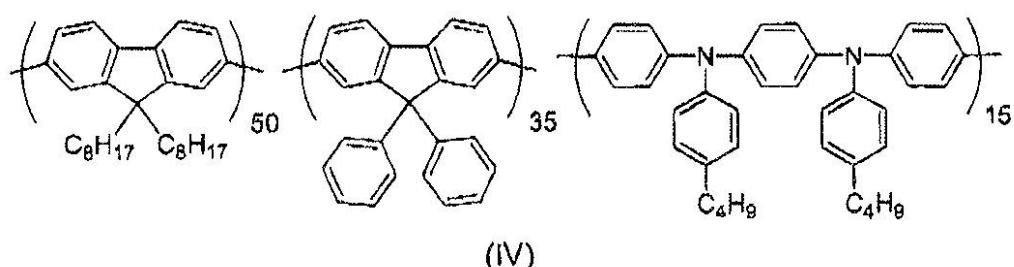
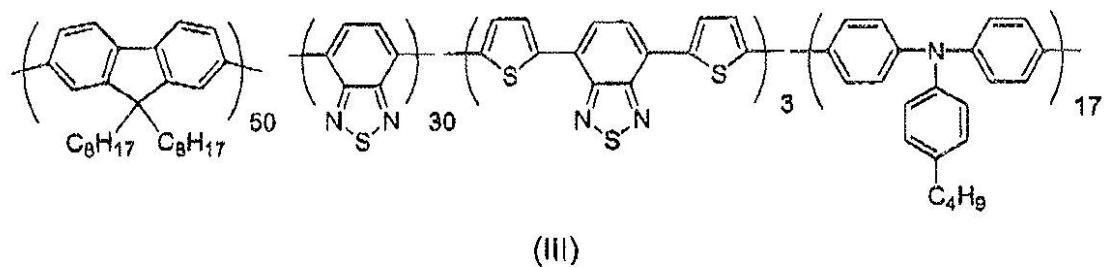
**【0147】**

この実施例によれば、次の構造：酸化インジウムスズ／PEDOT／赤色中間層／青色層／LiF／Ca／Alを有する装置を製造して、試験した。

**【0148】**

65nmのPEDOT層13を、ドイツ、レーフェルクーゼン（Leverkusen）のH Cスターク（H C Starck）から入手可能な处方ペイトロン（Baytron）P（RTM）をスピノンコーティングすることによって、ガラス基材11（米国コロラド（Colorado）のアプライド・フィルムズ（Applied Films）から入手可能）の上に担持された酸化インジウムスズ・アノード12上に堆積させる。電界発光有機材料の薄膜層14をPEDOT層の上に溶液からのスピノンコーティングによって堆積させる。この有機材料は、下記の式（III）の赤色発光ポリマーであって、キシレン溶液からのスピノンコーティングによって堆積させる。20 堆積後、この材料を180°の温度において1時間加熱する。この層の厚さは10nmである。冷却後、70nmの青色電界発光ポリマー層15を、加熱した赤色ポリマー層の上に溶液堆積させる。この青色ポリマーは下記の式（IV）を有し、キシレン溶液からのスピノンコーティングによって堆積させる。

**【化17】**



**【0149】**

フッ化リチウム層16を厚さ約4nmで青色光発光層の上に堆積させ、続いてカルシウム層17を厚さ約10nmまで堆積させ、そして最後にアルミニウム・キャッピング層140

8を厚さ約250nmまで堆積させるが、これらは全て熱蒸着によって適用される。次に、サエス・ゲッターズS p a ( Saes Getters Spa )から入手可能な金属エンクロージャー(図示せず)を用い、気密性シールを形成するように基材に接着剤で糊付けして装置を封止する。

#### 【0150】

800cd/m<sup>2</sup>を提供する電圧で装置を作動しているときの、装置構造体からの電界発光スペクトルを図3に示す。発光スペクトルからは、これが青色発光材料と赤色発光材料の2つの個々の層からの発光スペクトルの合成であることが明白である。作動中、赤色中間層は、青色エミッターよりもバンドギャップが小さいため、青色ポリマー層からの励起子または電子を妨げない。これら各層における発光は、励起子の放射崩壊によって生じる。10

#### 【0151】

図4を参照すると、この装置の有機発光領域は、白色発光より僅かに青色寄りの色を与える。この色は、赤色中間層のCIE座標と青色発光ポリマーのCIE座標を結ぶ線に沿って位置している。別の材料を選択して色を調節してもよい。例えば、より黄色の中間層を選択して青色ポリマーと共に使用すると、白色により近い色が得られる。

#### 【0152】

この実施例の装置は、1.47%までの外部量子効率を有すると共に、800cd/m<sup>2</sup>で作動させると一時間後に輝度を上げながら371時間の寿命を有することが分かる。寿命試験中の色はほぼ安定していることが分かった。従って、OLEDで白色発光をもたらすように意図された別の既知のものと比較すると、この装置は効率が良く、また安定性が高い。20

#### 【実施例2】

#### 【0153】

この実施例によれば、次の構造：酸化インジウムスズ/PEDOT/黄色中間層/青色層/Ba/Alを有する装置を製造して、試験した。

#### 【0154】

65nmのPEDOT層13を、ドイツ、レーフェルクーゼンのHCスタークから入手可能な処方ベイトロンP(RTM)をスピンドルコートィングすることによって、ガラス基材11(米国コロラドのアプライド・フィルムズから入手可能)の上に担持された酸化インジウムスズ・アノード12上に堆積させる。電界発光有機材料の薄膜層14をPEDOT層の上に溶液からのスピンドルコートィングによって堆積させる。この有機材料は、黄色発光ポリマー溶液であって、供給者(メルク(Merck))からプレミックスされて、「スーパー・イエロー(Super Yellow)」という名称で販売されているものを、所望の濃度までトルエンを用いて希釈することで得られる。堆積後、この材料を180°の温度において1時間加熱して中間層を形成する。この装置(装置1)における中間層の厚さは10nmであった。黄色発光ポリマー溶液の濃度を半分に下げた別の装置(装置2)も作製した。この層は、正確に測定されなかったが、低下した濃度から予測すると10nm未満であると確認した。冷却後、装置1および装置2の両方において、加熱した黄色ポリマー層の上に65nmの青色電界発光ポリマー層15を溶液から堆積させた。3040

#### 【0155】

両方の装置において、青色発光層の上にバリウム層16を厚さ約5nmで堆積させ、続いてアルミニウム・キャッピング層18を厚さ約250nmで堆積させるが、これらは全て熱蒸着によって適用される。次に、サエス・ゲッターズS p Aから入手可能な金属エンクロージャー(図示せず)を用い、気密性シールを形成するように基材に接着剤で糊付けして装置を封止する。

#### 【0156】

100cd/m<sup>2</sup>を提供する電圧で装置を作動しているときの、両方の装置構造物に関する電界発光スペクトルを図5に示す。発光スペクトルからは、これが青色発光材料と黄色発光材料の2つの個々の層からの発光スペクトルの合成であることが明白である。作動50

中、黄色中間層は、青色エミッターよりもバンドギャップが小さいため、青色ポリマー層からの励起子または電子を妨げない。これら各層における発光は、励起子の放射崩壊によって生じる。より薄い中間層を有する装置2では、黄色発光の程度が低下することも明白である。

#### 【0157】

図6を参照すると、装置1における有機発光領域は、白色発光に近い色を与える。この色は、黄色中間層のCIE座標と青色発光ポリマーのCIE座標を結ぶ線に近接して位置している。中間層の厚さを減らした装置2では、色が、黄色発光の減量に起因して、この線に沿って青方偏移する。このことは、この線に沿って発光を更に調節して、できる限り白色に近い色を獲得するために中間層の厚さをどのように利用することができるかを表している。10

#### 【0158】

装置1は、2.7%までの外部量子効率を有すると共に、 $1600 \text{ cd/m}^2$ で作動させると一時間後に輝度を上げながら350時間の寿命を有することが分かる。

#### 【実施例3】

#### 【0159】

この実施例によれば、次の構造：酸化インジウムスズ/PEDOT/緑色中間層/青色および赤色の混合層/Ba/Alを有する装置を製造して、試験した。

#### 【0160】

20  
65nmのPEDOT層13を、ドイツ、レーフェルクーゼンのHCスタークから入手可能な処方ペイトロンP(RTM)をスピンドルコートィングすることによって、ガラス基材11(米国コロラドのアプライド・フィルムズから入手可能)の上に担持された酸化インジウムスズ・アノード12上に堆積させる。国際公開第00/46321号パンフレットに開示されているような、フルオレン繰り返し単位、2,13-ベンゾチアジアゾール繰り返し単位、およびトリアリールアミン繰り返し単位を含んで成る緑色電界発光有機材料の薄膜層14をキシレン溶液からのスピンドルコートィングによってPEDOT層の上に堆積させる。30  
堆積後、この材料を180°の温度において1時間加熱した。この層の厚さは10nmである。冷却後、国際公開第03/095586号パンフレットに記載されているような青色電界発光ポリマーと、国際公開第00/46321号パンフレットに開示されているような、9,9-ジアルキルフルオレン繰り返し単位、ベンゾチアジアゾール繰り返し単位、トリアリールアミン繰り返し単位、および4,6-ジ(2-チエニル)-2,13-ベンゾチアジアゾールの赤色発光性繰り返し単位を含んで成る赤色電界発光ポリマーとのブレンドの70nmの層15を、加熱した緑色ポリマー層の上に溶液から堆積させた。

#### 【0161】

青色および赤色発光ブレンド層の上にBa層16を厚さ約4nmで堆積させ、続いて最後に、アルミニウム・キャッピング層18を厚さ約250nmまで堆積させるが、これらは全て熱蒸着によって適用される。次に、サエス・ゲッターズSpaから入手可能な金属エンクロージャー(図示せず)を用い、気密性シールを形成するように基材に接着剤で糊付けして装置を封止する。40

#### 【0162】

100cd/m<sup>2</sup>を提供する電圧で装置を作動しているときの、前記装置構造物からの電界発光スペクトルを図7に示す。発光スペクトルからは、これが緑色発光中間層と、赤色および青色発光混合層の2つの個々の層からの発光スペクトルの合成であることが明白である。青色材料からの発光自体は464nmにピークとして現れ、緑色中間層からの発光は535nmにピークとして現れ、そして赤色材料からの発光は、前記緑色中間層のピークにおける長波長側のショルダーとして現れる。作動中、緑色中間層は、混合層の青色エミッター構成成分よりもバンドギャップが小さいため、青色ポリマー層からの励起子または電子を妨げない。緑色中間層のバンドギャップは、赤色光が緑色中間層を通過することができるように、赤色エミッターよりも大きい。これら各層における発光は、励起子の50

放射崩壊によって生じる。

**【0163】**

この装置の有機発光領域は、白色発光より僅かに緑色寄りの色を与える、CIE座標(0.34、0.42)を有する。

**【0164】**

この実施例の装置は、1.48%までの外部量子効率を有することが分かる。したがって、OLEDで白色発光をもたらすように意図された別の既知のものと比較すると、この装置の効率は高い。

**【実施例4】**

**【0165】**

この実施例によれば、次の構造：酸化インジウムスズ/PEDOT/黄色中間層/青色層/Ba/Alを有する装置を製造して、試験した。

**【0166】**

65nmのPEDOT層13を、ドイツ、レーフェルクーゼンのHCスタークから入手可能な処方ベイトロンP(RTM)をスピンドルコートィングすることによって、ガラス基材11(米国コロラドのアプライド・フィルムズから入手可能)の上に担持された酸化インジウムスズ・アノード12上に堆積させる。電界発光有機材料の薄膜層14をPEDOT層の上に溶液からのスピンドルコートィングによって堆積させる。この有機材料は黄色発光ポリマー溶液であって、供給者(メルク)からプレミックスされたものを入手した。堆積後、この材料を180°の温度において1時間加熱した。この厚さは10nmであった。冷却後、65nmの青色電界発光ポリマー層15を、加熱した黄色ポリマー層の上に溶液から堆積させた。装置3は、青色ポリマー1を用い、そして装置1は、ホール輸送単位を増量した青色ポリマー2を用いた。青色ポリマーはいずれも、キシレン溶液からのスピンドルコートィングにより堆積させた。

**【0167】**

両方の装置において、青色発光層の上にバリウム層16を厚さ約5nmで堆積させ、続いてアルミニウム・キャッピング層18を厚さ約250nmまで堆積させるが、これらはいずれも熱蒸着によって適用される。次に、サエス・ゲッターズSpaから入手可能な金属エンクロージャー(図示せず)を用い、気密性シールを形成するように基材に接着剤で糊付けして装置を封止する。

**【0168】**

100cd/m<sup>2</sup>を提供する電圧で装置を作動しているときの、両方の装置構造物に関する電界発光スペクトルを図8に示す。発光スペクトルからは、これが青色発光材料と黄色発光材料の2つの個々の層からの発光スペクトルの合成であることが明白である。作動中、黄色中間層は、青色エミッターよりもバンドギャップが小さいため、青色ポリマー層からの励起子または電子を妨げない。これら各層における発光は、励起子の放射崩壊によって生じる。ホール輸送単位を増やした装置1では、黄色発光の程度が低下していることも明らかである。このことは、中間層/LEP界面から離れて形成された励起子の数が増加することに基づいており、そのため、励起子がLEPから中間層へ移動する可能性が減少して、黄色発光が低下すると考えられる。

**【0169】**

図9を参照すると、装置1における有機発光領域は、白色発光に近い色を与える。この色は、黄色中間層のCIE座標と青色発光ポリマーのCIE座標を結ぶ線に近接して位置している。ホール輸送の減少した装置3では、色が、黄色発光の減量に起因して、この線に沿って青方偏移している。この実施例は、青色発光ポリマー中の輸送単位の量を変更することによって色をどのように微調整することができるかを表している。前記中間層内のホール輸送単位の変更はまた、全体の色にも影響を及ぼすと予想される。

**【図面の簡単な説明】**

**【0170】**

【図1】OLEDの典型的な断面構造の略図を示す。

10

20

30

40

50

【図2】本発明によるOLEDの断面構造の略図を示す。

【図3】本発明による装置からの発光波長に対する正規化した電界発光強度のグラフを示す。

【図4】本発明の装置からの発光が生じる場所を表示するCIE座標のグラフを示す。

【図5】実施例2の装置1および2の両者に関する電界発光スペクトルを示す。

【図6】実施例2の装置1および2に関する発光が生じる場所を表示するCIE座標のグラフを示す。

【図7】実施例3の装置構造に関する電界発光スペクトルを示す。

【図8】実施例4の装置1および3の両者に関する電界発光スペクトルを示す。

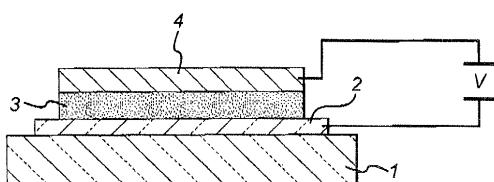
【図9】実施例4の装置1および3に関する発光が生じる場所を表示するCIE座標のグラフを示す。 10

#### 【符号の説明】

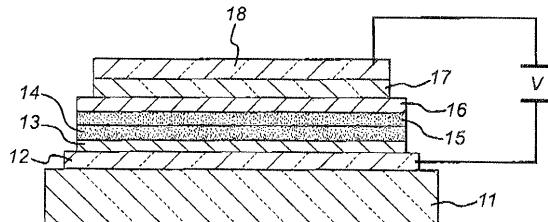
##### 【0171】

- 1 基材
- 2 アノード
- 3 電界発光有機材料
- 4 カソード材料
- 1 1 基材
- 1 2 アノード
- 1 3 P E D O T 層
- 1 4 薄膜層
- 1 5 電界発光ポリマー
- 1 6 フッ化リチウム層
- 1 7 カルシウム層
- 1 8 アルミニウム・キャッピング層

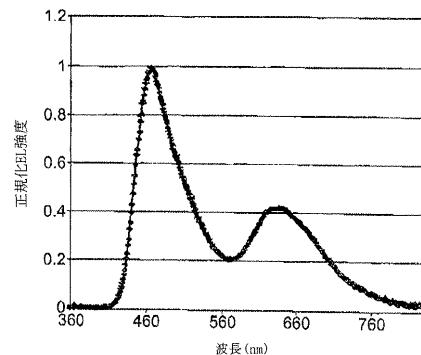
【図1】



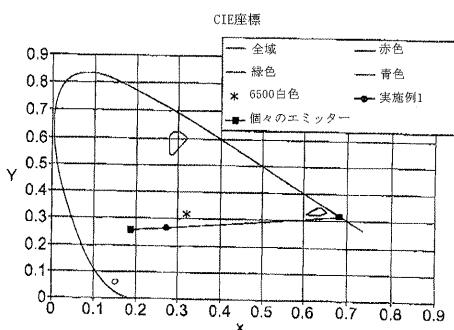
【図2】



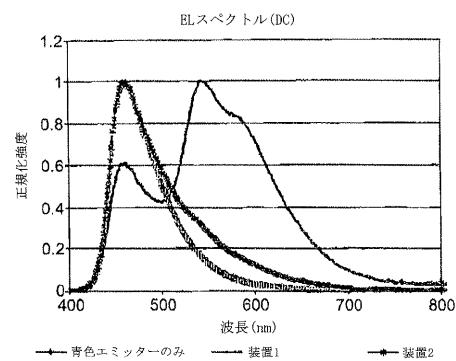
【図3】



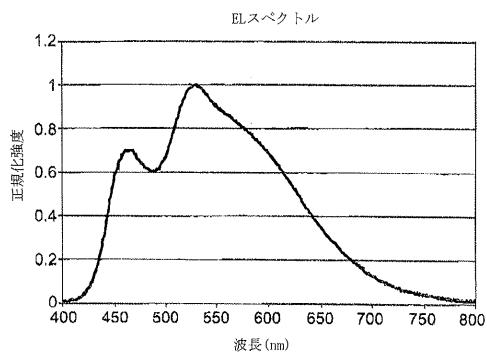
【図4】



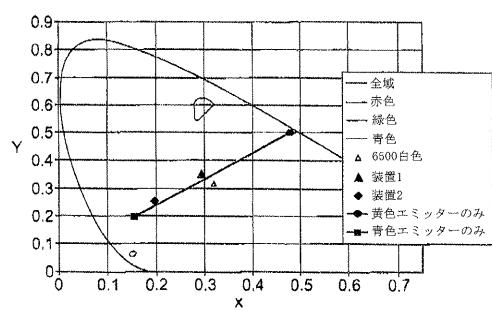
【図5】



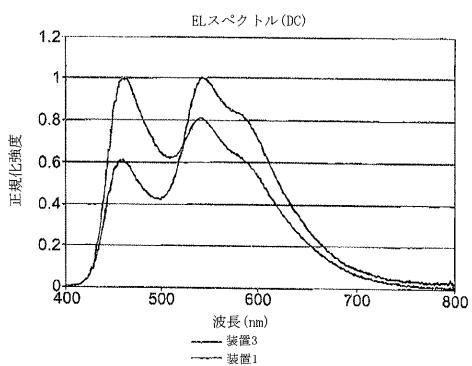
【図7】



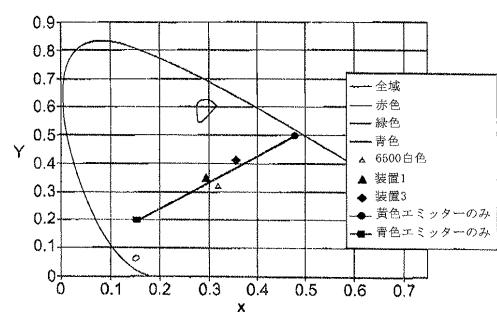
【図6】



【図8】



【図9】



---

フロントページの続き

(31)優先権主張番号 PCT/GB2005/03892  
(32)優先日 平成17年10月11日(2005.10.11)  
(33)優先権主張国 英国(GB)

(74)代理人 230104019  
弁護士 大野 聖二  
(74)代理人 100106840  
弁理士 森田 耕司  
(74)代理人 100105991  
弁理士 田中 玲子  
(74)代理人 100115679  
弁理士 山田 勇毅  
(74)代理人 100114465  
弁理士 北野 健  
(72)発明者 パテル, ナリン  
イギリス国 シーピー3 6ディーダブリュ ケンブリッジシャイア, キャンボーン ビジネス  
パーク, ビルディング 2020  
(72)発明者 コンウェイ, ナターシャ  
イギリス国 シーピー3 6ディーダブリュ ケンブリッジシャイア, キャンボーン ビジネス  
パーク, ビルディング 2020  
(72)発明者 ウィルソン, リチャード  
イギリス国 シーピー3 6ディーダブリュ ケンブリッジシャイア, キャンボーン ビジネス  
パーク, ビルディング 2020  
(72)発明者 グリツツイ, イラリア  
イギリス国 シーピー3 6ディーダブリュ ケンブリッジシャイア, キャンボーン ビジネス  
パーク, ビルディング 2020

審査官 本田 博幸

(56)参考文献 特開2002-237386(JP, A)  
特表2002-539292(JP, A)  
特開2004-047469(JP, A)  
国際公開第2004/084260(WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H05B 33/12  
H05B 33/10  
H01L 51/50  
C08G 61/12  
C09K 11/06