

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2016年5月26日(26.05.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/079985 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) H01L 27/32 (2006.01)
G09F 9/30 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/005748
- (22) 国際出願日: 2015年11月17日(17.11.2015)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2014-232827 2014年11月17日(17.11.2014) JP
特願 2014-232875 2014年11月17日(17.11.2014) JP
- (71) 出願人: 株式会社 J O L E D (JOLED INC.) [JP/JP];
〒1010054 東京都千代田区神田錦町三丁目2番地 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 米田 和弘 (YONEDA, Kazuhiro). 松末
哲征 (MATSUSUE, Noriyuki).
- (74) 代理人: 吉川 修一, 外 (YOSHIKAWA, Shuichi et
al.); 〒5320011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目

3番10号タナカ・イトーピア新大阪ビル6階
新居国際特許事務所内 Osaka (JP).

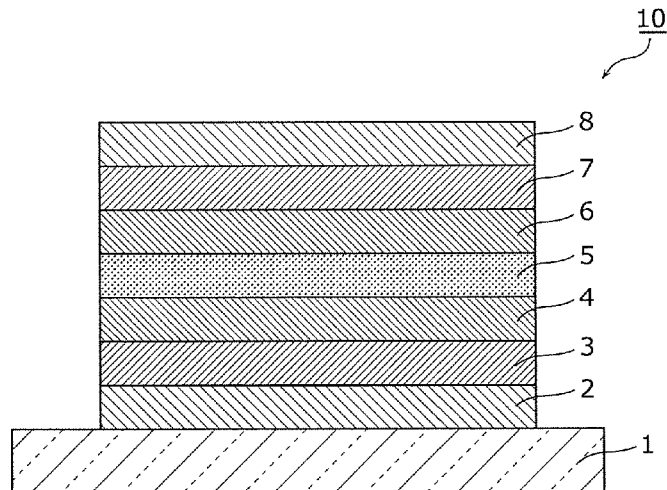
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC EL ELEMENT AND DISPLAY DEVICE

(54) 発明の名称: 有機EL素子及び表示装置

【図1】



(57) Abstract: An organic EL element (10) is provided with a first electrode (2), an interlayer (4) formed above the first electrode (2), an organic light-emitting layer (5) formed with the interlayer (4) as the foundation, and a second electrode (8) formed above the organic light-emitting layer (5). The organic light-emitting layer (5) includes at least a host material and a dopant material, and the interlayer (4) is constituted by a material having a larger energy gap than the dopant material, and a deeper HOMO level than the dopant material.

(57) 要約: 有機EL素子(10)は、第1電極(2)と、第1電極(2)の上方に形成されたインターレイヤー(4)と、インターレイヤー(4)を下地として形成された有機発光層(5)と、有機発光層(5)の上方に形成された第2電極(8)とを備え、有機発光層(5)は、少なくともホスト材料とドーパント材料を含み、インターレイヤー(4)は、前記ドーパント材料よりもエネルギーギャップが大きく、かつ、前記ドーパント材料のHOMO準位よりも深い材料で構成されている。



WO 2016/079985 A1

OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：有機EL素子及び表示装置

技術分野

[0001] 本開示は、有機エレクトロルミネッセンス（EL：Electro Luminescence）素子及びこれを用いた表示装置に関する。

背景技術

[0002] 有機EL素子は、ディスプレイや照明等、様々な発光装置への応用が期待されている。例えば、有機EL素子を画素に用いた有機EL表示装置（有機EL表示パネル）が挙げられる。

[0003] 有機EL素子は、基板、陽極、有機発光層及び陰極から構成されている。また、有機EL素子は、必要に応じて、有機発光層と陽極又は陰極との間に電荷注入層や電荷輸送層等の電荷機能層が形成される。

[0004] 有機EL素子としては、低分子有機発光材料を蒸着することで有機発光層を形成する蒸着型有機EL素子がある。蒸着型有機EL素子は非常に高い素子性能を示すが、蒸着プロセスは材料の利用効率が低く、高真空下で成膜を行うため、コストが高いという課題もある。

[0005] 一方、高分子有機発光材料を塗布（印刷）することで有機発光層を形成する塗布型有機EL素子がある。塗布プロセスは有機発光材料を溶解させたインクを必要量だけ塗布して形成し、かつ、大気圧下で成膜することが可能なため、コストが安いというメリットがある。例えば、特許文献1には、塗布型有機EL素子が開示されている。また、特許文献1では、発光層を塗布で形成する際に、下地層を溶解させてしまわないように、下地層にクロスリンク機能を持たせている（以降、クロスリンク機能を有する発光層の下地層をインターレイヤーという）。しかしながら、このようなインターレイヤーを用いた場合でも、低分子有機発光材料に比べて、高分子有機発光材料の素子性能は不十分であるという課題があった。

[0006] そこで、低分子有機発光材料を塗布で形成するという取り組みが行われて

いる（例えば特許文献2）。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：国際公開第2005/052027号

特許文献2：特開2006-190759号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら、インターレイヤーを用いた塗布型有機EL素子において、有機発光材料を高分子有機発光材料から低分子有機発光材料に置き換えても、蒸着型有機EL素子に比べて、素子性能が低くなってしまうという課題があった。特に、有機発光層の材料として青色有機発光材料を用いた場合、塗布型有機EL素子では極めて発光効率が低くなる。また、有機発光層の材料として青色有機発光材料を用いた場合、塗布型有機EL素子では極めて寿命が低くなる。

[0009] 本開示は、上記課題を解決するためになされたものであり、低分子有機発光材料を有機発光層に用いた塗布型有機EL素子であっても高い素子性能を有する有機EL素子及び表示装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

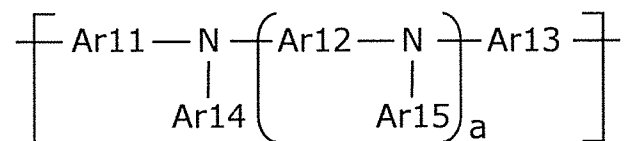
[0010] 上記目的を達成するために、第1の有機EL素子の一態様は、第1電極と、前記第1電極の上方に形成されたインターレイヤーと、前記インターレイヤーを下地として形成された有機発光層と、前記有機発光層の上方に形成された第2電極とを備え、前記有機発光層は、少なくともホスト材料とドーパント材料とを含み、前記インターレイヤーは、前記ドーパント材料よりもエネルギーギャップが大きく、かつ、前記ドーパント材料のHOMO準位よりも深い材料で構成されていることを特徴とする。

[0011] 上記目的を達成するために、第2の有機EL素子の一態様は、第1電極と、前記第1電極の上方に形成されたインターレイヤーと、前記インターレイ

ヤーを下地として形成された有機発光層と、前記有機発光層の上方に形成された第2電極とを備え、前記有機発光層は、少なくともホスト材料とドーパント材料とを含み、前記インターレイヤーの材料は、架橋性基及び不溶化基の少なくとも1つを有し、(式1)、(式2)、又は(式3)を構成単位とする材料であって、前記構成単位にアリールアミンを含み、かつフルオレンを含まないことを特徴とする。

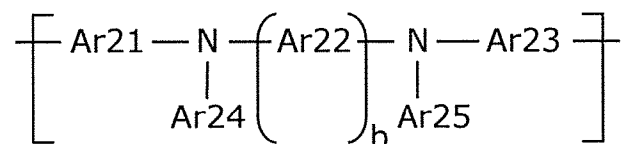
[0012] [化1]

(式1)



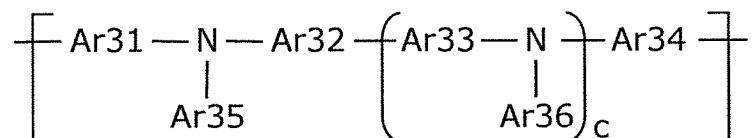
[0013] [化2]

(式2)



[0014] [化3]

(式3)



[0015] (式1)において、Ar11～Ar15は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、aは0から3の整数を表している。

[0016] (式2)において、Ar21～Ar25は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、bは0から3の整数を表している。

[0017] (式3)において、Ar31～Ar36は、同一又は異なった、置換又は

無置換の芳香族基を表し、 c は0から3の整数を表している。

[0018] また、 $Ar_{11} \sim Ar_{15}$ 、 $Ar_{21} \sim Ar_{25}$ 、又は、 $Ar_{31} \sim Ar_{36}$ を表す芳香族基は、縮合多環構造を含んでいてもよいし、ヘテロ環（複素環）構造を含んでいてもよい。

発明の効果

[0019] 低分子有機発光材料を有機発光層に用いた塗布型有機EL素子であったとしても、高い素子性能を有する有機EL素子を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0020] [図1]図1は、実施の形態に係る有機EL素子の断面図である。

[図2]図2は、本実験で用いた有機EL素子の断面図である。

[図3]図3は、本実験で用いた各材料のエネルギーギャップ及びHOMO (Highest Occupied Molecular Orbital) 準位と各材料の成膜プロセス方法とを示す図である。

[図4]図4は、図3の各材料を用いて有機EL素子を作製した場合における、当該各材料のエネルギーギャップと有機EL素子の発光効率との関係を示す図である。

[図5]図5は、図3の各材料を用いて有機発光層のドーパント材料との混合膜を作製した場合における、当該各材料のHOMO準位（エネルギー値）とPL発光量子収率 (PLQE: Photo Luminescence Quantum Efficiency) との関係を示す図である。

[図6]図6は、「DNTPD」もしくは「Poly-TPD」を用いた場合の、有機EL素子における有機発光層と正孔輸送層とのエネルギーダイアグラムである。

[図7]図7は、図3の各材料を用いて有機EL素子を作製した場合における各有機EL素子の寿命特性を示す図である。

[図8]図8は、「NPB」及び「NPAPF」を用いて有機EL素子を作製した場合における各有機EL素子の寿命評価前後の電圧－輝度特性を示す図である。

発明を実施するための形態

[0021] 以下、本開示の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。以下に説明する実施の形態は、いずれも本開示の好ましい一具体例を示すものである。したがって、以下の実施の形態で示される数値、形状、材料、構成要素、構成要素の配置位置及び接続形態などは、一例であって本開示を限定する主旨ではない。よって、以下の実施の形態における構成要素のうち、本開示の最上位概念を示す独立請求項に記載されていない構成要素については、任意の構成要素として説明される。

[0022] なお、各図は、模式図であり、必ずしも厳密に図示されたものではない。また、各図において、実質的に同一の構成に対しては同一の符号を付しており、重複する説明は省略又は簡略化する。

[0023] (実施の形態)

[有機EL素子の構成]

まず、実施の形態に係る有機EL素子10について、図1を用いて説明する。図1は、実施の形態に係る有機EL素子の断面図である。

[0024] 図1に示すように、有機EL素子10は、基板1と、第1電極2と、正孔注入層3と、インターレイヤー4と、有機発光層5と、電子輸送層6と、電子注入層7と、第2電極8とがこの順で積層された構成である。

[0025] 本実施の形態における有機EL素子10は、少なくとも有機発光層5が塗布法で形成された塗布型有機EL素子である。一例として、有機EL素子10では、第1電極2がスパッタリング法で形成され、正孔注入層3、インターレイヤー4及び有機発光層5が塗布法（印刷法）で形成され、電子輸送層6、電子注入層7及び第2電極8が蒸着法で形成される。

[0026] 基板1は、透明基板等の光透過性を有する透光基板であり、例えば、ガラス材からなるガラス基板である。なお、基板1は、ガラス基板に限るものではなく、ポリカーボネート樹脂やアクリル樹脂等の透光性樹脂材料からなる透光性樹脂基板や、有機EL表示装置のバックプレーンであるTFT（薄膜トランジスタ）基板であってもよい。

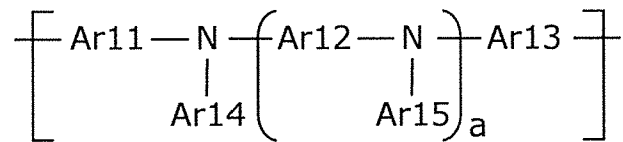
- [0027] 第1電極2は、下部電極であり、基板1の上に形成される。第1電極2は、透光性を有する透明電極であって、例えば、ITO (Indium Tin Oxide) 又はIZO (Indium Zinc Oxide) 等の透明導電性材料からなる透明導電膜が用いられる。本実施の形態における第1電極2は、ITO膜からなる透明電極である。また、本実施の形態において、第1電極2は、陽極（アノード）である。なお、第1電極2は、透明電極に限るものではなく、例えば、アルミニウム（Al）又は銀（Ag）、あるいは、アルミニウム又は銀の合金等、反射性を有する反射電極であってもよいし、反射電極と透明電極とが積層されたものであってもよい。
- [0028] 正孔注入層3は、第1電極2の上に形成される。正孔注入層3は、第1電極2と有機発光層5との間に介在し、有機発光層5に正孔を注入する機能を有する。
- [0029] 正孔注入層3の材料としては、例えば、ポリチオフェン誘導体、ポリアニリン誘導体、ポリピロール誘導体等が用いられる。具体的には、PEDOT : PSS（ポリチオフェンとポリスチレンスルホン酸との混合物）が用いられる。また、正孔注入層3は、金属酸化物を用いられてもよい。具体的にはタングステン（W）、モリブテン（Mo）、銀（Ag）、クロム（Cr）、バナジウム（V）、ニッケル（Ni）、イリジウム（Ir）等の酸化物が用いられる。本実施の形態において、正孔注入層3は、PEDOT : PSSである。
- [0030] インターレイヤー4は、第1電極2の上方に形成される。本実施の形態において、インターレイヤー4は、正孔注入層3の上に形成される。インターレイヤー4は、有機発光層5の下地層であり、クロスリンク機能を有する。クロスリンク機能とは、架橋性基又は不溶化基が熱あるいは紫外光等のエネルギー線の照射もしくはその組み合わせにより、化学変化し、有機溶媒や水に対し不溶化する機能のことをいう。クロスリンク機能を有するインターレイヤー4を形成することによって、有機発光層5を塗布法で形成する際に、インターレイヤー4を溶解させてしまうことを抑制することができる。

- [0031] また、インターレイヤー4は、正孔注入層3と有機発光層5との間に介在し、正孔注入層3から注入された電荷（本実施の形態では、正孔）を有機発光層5へ輸送する機能を有する。
- [0032] 本実施の形態において、インターレイヤー4は、クロスリンク機能を有する材料によって構成される。また、インターレイヤー4は、有機発光層5のドーパント材料よりもエネルギーギャップ（ E_g ）が大きい材料で構成される。本実施の形態においては、インターレイヤー4は、有機発光層5のホスト材料よりも E_g が大きい材料で構成される。例えば、インターレイヤー4を構成する材料のエネルギーギャップは、 2.95 eV 以上であり、好ましくは、 3.10 eV 以上である。なお、 E_g は、HOMO準位とLUMO（Lowest Unoccupied Molecular Orbital）準位とのエネルギー差である。
- [0033] HOMO準位の測定法としては、例えば、大気中光電子分光法、電気化学的手法（サイクリックボルタメトリー）、又は、光電子分光法（PES）等が挙げられる。一方、LUMO準位の測定法としては、例えば、逆光電子分光法（IPES）、又は、光吸収分光法により吸収端から求めたエネルギーギャップ（energy gap）とHOMO準位とから算出する方法等が挙げられる。また、それぞれの準位を分子起動法計算を用いて、HOMO準位及びLUMO準位を算出する手法を用いてもよい。
- [0034] また、インターレイヤー4は、有機発光層5のドーパント材料よりもHOMO準位が深い材料で構成される。つまり、インターレイヤー4のHOMO準位は、有機発光層5のドーパント材料のHOMO準位よりもエネルギー準位が大きい材料で構成される。本実施の形態において、インターレイヤー4を構成する材料のHOMO準位は、有機発光層5のホスト材料のHOMO準位と略同等である。
- [0035] インターレイヤー4の材料としては、例えば、以下の（式1）、（式2）又は（式3）を構成単位とする材料を用いることができる。具体的には、インターレイヤー4の材料は、架橋性基又は不溶化基の少なくとも1つを有し

、（式１）、（式２）又は（式３）を構成単位とする材料であって、構成単位にアリールアミンを含み、フルオレンを含まない材料である。

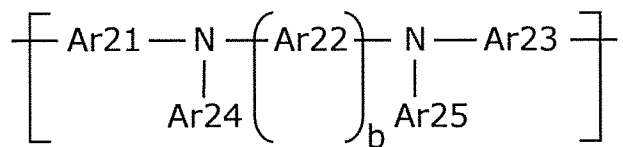
[0036] [化4]

（式1）



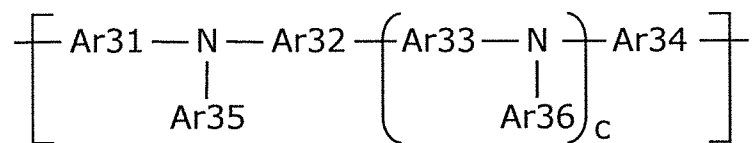
[0037] [化5]

（式2）



[0038] [化6]

（式3）



[0039] （式１）において、Ar11～Ar15は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、aは0から3の整数を表している。

[0040] （式２）において、Ar21～Ar25は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、bは0から3の整数を表している。

[0041] （式３）において、Ar31～Ar36は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、cは0から3の整数を表している。

[0042] また、前記Ar11～Ar15、Ar21～Ar25、又は、Ar31～Ar36を表す芳香族基は、縮合多環構造を含んでいてもよいし、ヘテロ環（複素環）構造を含んでいてもよい。

- [0043] また、インターレイヤー４は、有機発光層５から第１電極２側への電荷（本実施の形態では、電子）の突き抜けを抑制する電荷ブロック機能や、有機発光層５の励起状態の消光を抑制する機能等を有しているとよい。
- [0044] 有機発光層５は、インターレイヤー４の上に形成される。具体的に、有機発光層５は、インターレイヤー４を下地として塗布プロセス（塗布法）で形成される。有機発光層５の材料としては低分子材料を用いる。一例として、有機発光層５は、低分子青色有機発光材料によって構成された青色発光層である。ここで、低分子材料とは分子量が５０００以下の化合物を指す。
- [0045] また、有機発光層５は、陽極（本実施の形態では第１電極２）から注入された正孔と、陰極（本実施の形態では第２電極８）から注入された電子とが、有機発光層５内で再結合することで励起子が生成されて発光する層である。
- [0046] 有機発光層５は、ドーパント材料単独で構成されていてもよいが、より好ましくは、ホスト材料とドーパント材料とを含む方がよい。ホスト材料は、主に電子又は正孔の電荷輸送の機能を担っており、ドーパント材料は、発光の機能を担っている。
- [0047] ホスト材料は１種類のみに限られるものではなく、２種類以上であってもよい。ドーパント材料の量は、ホスト材料に対して、０．０１重量％～３０重量％であるとよく、より好ましくは、０．０１重量％～１０重量％である。なお、２種類以上のホスト材料を含む場合、有機発光層５のホスト材料とは、最もエネルギーギャップの小さいホスト材料のことを指す。
- [0048] 有機発光層５のホスト材料としては、例えば、アミン化合物、縮合多環芳香族化合物、ヘテロ環化合物が用いられる。
- [0049] アミン化合物としては、例えば、モノアミン誘導体、ジアミン誘導体、トリアミン誘導体、テトラアミン誘導体が用いられる。
- [0050] 縮合多環芳香族化合物としては、例えば、アントラセン誘導体、ナフタレン誘導体、ナフタセン誘導体、フェナントレン誘導体、クリセン誘導体、フルオランテン誘導体、トリフェニレン誘導体、ペンタセン誘導体、ペリレン

誘導体、等が挙げられる。

[0051] ヘテロ環化合物としては、例えば、カルバゾール誘導体、フラン誘導体、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、トリアジン誘導体、イミダゾール誘導体、ピラゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピロール誘導体、インドール誘導体、アザインドール誘導体、アザカルバゾール、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フタロシアン誘導体等が挙げられる。

[0052] また、有機発光層5のドーパント材料としては、例えば、ピレン誘導体、フルオランテン誘導体、アリールアセチレン誘導体、フルオレン誘導体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アントラセン誘導体、クリセン誘導体、が用いられる。また、有機発光層5のドーパント材料としては、金属錯体を用いてもよい。金属錯体としては、例えば、イリジウム(Ir)、白金(Pt)、オスミウム(Os)、金(Au)、レニウム(Re)、ルテニウム(Ru)等の金属原子と配位子とを有するものが挙げられる。

[0053] 電子輸送層6は、有機発光層5の上に形成される。電子輸送層6は、有機発光層5と第2電極8との間に介在し、第2電極8から注入された電子を有機発光層5へ輸送する機能を有する。なお、電子輸送層6は、さらに、有機発光層5から第2電極8側への電荷（本実施の形態では正孔）の突き抜けを抑制する電荷ブロック機能や、有機発光層5の励起状態の消光を抑制する機能等を有しているとよい。

[0054] 電子輸送層6の材料としては、例えば、分子内にヘテロ原子を1個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が用いられる。芳香族ヘテロ環化合物としては、例えば、ピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環、ベンズイミダゾール環、フェナントロリン環、キナゾリン環等を骨格に含む化合物が挙げられる。

[0055] 電子注入層7は、電子輸送層6の上に形成される。電子注入層7は、電子輸送層6と第2電極8との間に介在し、有機発光層5に電子を注入する機能を有する。

[0056] 電子注入層 7 の材料としては、例えば、金属、金属フッ化物、金属酸化物が用いられる。金属、金属フッ化物及び金属酸化物としては、例えば、リチウム (Li)、ナトリウム (Na)、マグネシウム (Mg)、アルミニウム (Al)、カリウム (K)、セシウム (Cs)、バリウム (Ba)、ストロンチウム (Sr) 等の金属、及び、そのフッ化物、酸化物が挙げられる。また、電子注入層 7 の材料としては、金属錯体を用いてもよい。金属錯体としては、例えば、8-キノリノラトナトリウム、8-キノリノラトリチウム、リチウム 2- (2-ピリジル) フェノラート、リチウム 2- (2', 2' '-ビピリジン-6'-イル) フェノラート等が挙げられる。

[0057] 第 2 電極 8 は、電子輸送層 6 の上に形成される。本実施の形態における第 2 電極 8 は、光反射性を有する反射電極であり、例えば反射性を有する金属材料を用いて形成された金属電極である。また、本実施の形態において、第 2 電極 8 は、陰極 (カソード) である。

[0058] 第 2 電極 8 の材料としては、例えば、アルミニウム (Al)、マグネシウム (Mg)、銀 (Ag)、アルミニウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等が用いられる。なお、第 2 電極 8 は、反射電極に限るものではなく、第 1 電極 2 と同様に、ITO 膜等の透明電極としてもよい。

[0059] このように構成される有機 EL 素子 10 は、電源線 (不図示) 等を介して第 1 電極 2 と第 2 電極 8 との間に所定の電圧が印加されると、第 1 電極 2 及び第 2 電極 8 からそれぞれ正孔及び電子が有機発光層 5 に注入される。そして、正孔と電子とが有機発光層 5 で結合することにより光が発生する。

[0060] 本実施の形態では、基板 1 及び第 1 電極 2 が透光性を有し、第 2 電極 8 が反射性を有するので、有機 EL 素子 10 は、基板 1 側から光が放出するボトムエミッション構造である。なお、有機 EL 素子 10 は、ボトムエミッション構造に限るものではなく、トップエミッション構造であってもよい。

[0061] [有機 EL 素子の特徴]

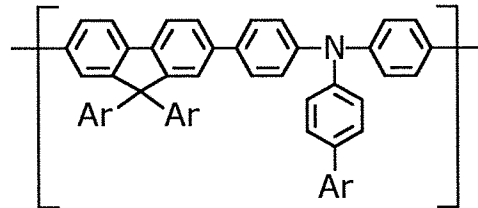
次に、本実施の形態に係る有機 EL 素子 10 の特徴について、本開示の技術に至った経緯も含めて説明する。

- [0062] 一般的に、有機EL素子は、基板上に、陽極、有機発光層及び陰極が積層された構造となっており、さらに、必要に応じて、有機発光層と陽極又は陰極との間に電荷注入層や電荷輸送層等の電荷機能層が形成される。
- [0063] 有機EL素子100は、例えば、図2に示すように、基板101と、第1電極（陽極）102と、正孔注入層103と、正孔輸送層104と、有機発光層105と、電子輸送層106と、電子注入層107と、第2電極（陰極）108とがこの順で積層された構成である。
- [0064] 有機発光材料を蒸着することで有機発光層105を形成する蒸着型有機EL素子の場合、例えば、正孔注入層103、正孔輸送層104、有機発光層105、電子輸送層106、電子注入層107及び第2電極108の各々を蒸着法で順次形成する。
- [0065] 一方、有機発光材料を塗布（印刷）することで有機発光層105を形成する塗布型の有機EL素子の場合では、正孔注入層103を塗布法（印刷法）もしくはスパッタリング法で形成し、さらに、正孔注入層103の上に、正孔輸送層104と有機発光層105とを塗布法（印刷法）で形成し、さらに、有機発光層105の上に電子輸送層106と電子注入層107と第2電極（陰極）108とを蒸着法で形成する。
- [0066] 有機発光層105を塗布法で形成する場合、正孔輸送層104は、有機発光層105の下地層として、クロスリンク機能を持ったインターレイヤーを用いる必要がある。そうすることで、有機発光層105を形成する際に、正孔輸送層104を溶解させてしまうことを抑制することができる。
- [0067] インターレイヤーに用いられる材料は、正孔輸送性と溶解性とを制御するために、例えば、以下の（式4）を構成単位とする材料、及び、その誘導体であり、その分子構造はフルオレンとアリールアミンとからなる。さらに、インターレイヤーに用いられる材料は、クロスリンク機能を有する。このような材料は、エネルギーギャップが狭く、HOMO準位が浅いという特徴を有する。

[0068]

[化7]

(式4)



[0069] 本願発明者らは、有機発光層の材料として低分子有機発光材料を用いた塗布型有機EL素子であったとしても、優れた素子性能を得ることができるインターレイヤーの材料について鋭意検討した。

[0070] まず、本願発明者らは、インターレイヤーを構成する材料の物性に着目し、有機EL素子100の発光効率について評価した。

[0071] 具体的には、図3に示される材料を図2の正孔輸送層104の材料として用いて有機EL素子100を作製し、各有機EL素子100の発光効率を評価した。以下、その実験と評価結果について説明する。

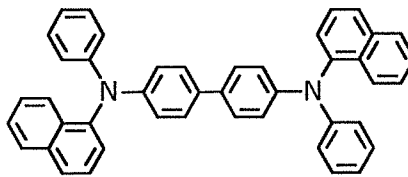
[0072] まず、本実験に用いた具体的な材料について、図3を用いて説明する。図3は、本実験で用いた材料と各材料のエネルギーギャップ及びHOMO準位と各材料の成膜プロセス方法とを示している。なお、本実験において、HOMO準位は、大気中光電子分光法を用いて測定し、エネルギーギャップは、光吸収分光法により吸収端波長から求めた。

[0073] 「NPB」は、以下の(式5)の化学式で表される低分子材料であって、フルオレンを含まず、アリアルアミンを含む構造である。また、「NPB」は、エネルギーギャップが3.05(eV)で、HOMO準位が5.4(eV)である。本実験において、「NPB」は、蒸着法によって形成した。

[0074]

[化8]

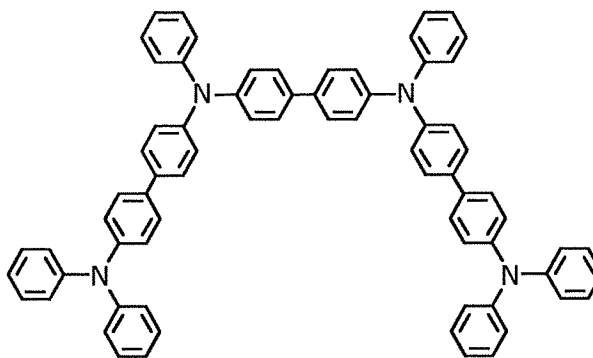
(式5)



[0075] 「TPT1」は、以下の（式6）の化学式で表される低分子材料であって、フルオレンを含まず、アリールアミンを含む構造である。また、「TPT1」は、エネルギーギャップが3.05 (eV) で、HOMO準位が5.3 (eV) である。本実験において、「TPT1」は、蒸着法によって形成した。

[0076] [化9]

(式6)

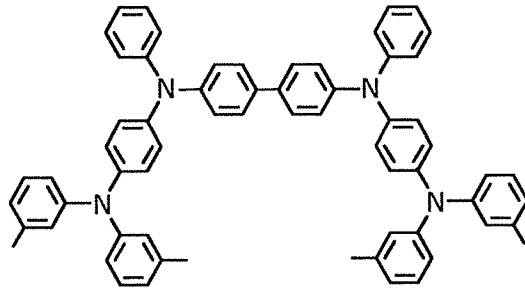


[0077] 「DNTPD」は、以下の（式7）の化学式で表される低分子材料であって、フルオレンを含まず、アリールアミンを含む構造である。また、「DNTPD」は、エネルギーギャップが3.05 (eV) で、HOMO準位が5.1 (eV) である。本実験において、「DNTPD」は、蒸着法によって形成した。

[0078]

[化10]

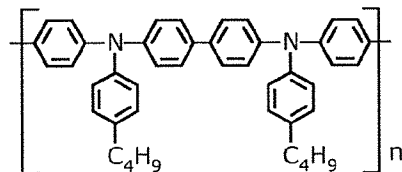
(式7)



[0079] 「Poly-TPD」は、以下の(式8)を構成単位とする高分子材料であって、フルオレンを含まず、アリールアミンを含む構造である。また、「Poly-TPD」は、エネルギーギャップが3.00 (eV) で、HOMO準位が5.1 (eV) である。本実験において、「Poly-TPD」は、塗布法によって形成した。

[0080] [化11]

(式8)

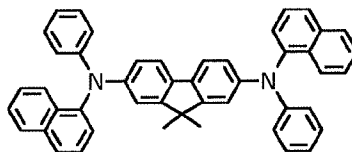


[0081] 「DMFL-NPB」は、以下の(式9)の化学式で表される低分子材料であって、フルオレン及びアリールアミンを含む構造である。また、「DMFL-NPB」、エネルギーギャップが3.00 (eV) で、HOMO準位が5.3 (eV) である。本実験において、「DMFL-NPB」は、蒸着法によって形成した。

[0082]

[化12]

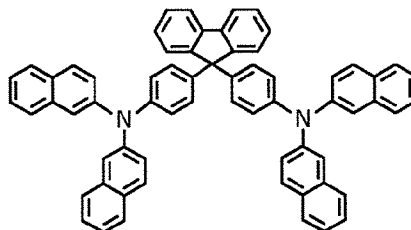
(式9)



[0083] 「NPAPF」は、以下の(式10)の化学式で表される低分子材料であって、フルオレン及びアリールアミンを含む構造である。また、「NPAPF」は、エネルギーギャップが3.00 (eV) で、HOMO準位が5.3 (eV) である。本実験において、「NPAPF」は、蒸着法によって形成した。

[0084] [化13]

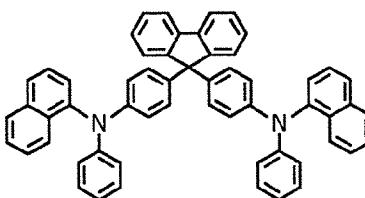
(式10)



[0085] 「NPBAF」は、以下の(式11)の化学式で表される低分子材料であって、フルオレン及びアリールアミンを含む構造である。また、「NPBAF」は、エネルギーギャップが3.10 (eV) で、HOMO準位が5.6 (eV) である。本実験において、「NPBAF」は、蒸着法によって形成した。

[0086] [化14]

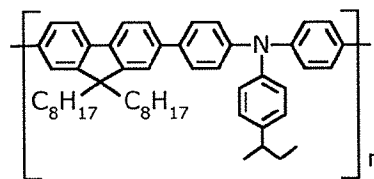
(式11)



[0087] 「F8-TPA」は、以下の(式12)を構成単位とする高分子材料であって、フルオレン及びアリールアミンを含む構造である。また、「F8-TPA」は、エネルギーギャップが2.95 (eV) で、HOMO準位が5.4 (eV) である。本実験において、「F8-TPA」は、塗布法によって形成した。

[0088] [化15]

(式12)



[0089] なお、本実験において、有機発光層としては、エネルギーギャップが2.95 (eV) で、HOMO準位が5.8 (eV) のホスト材料と、エネルギーギャップが2.80 (eV) で、HOMO準位が5.3 (eV) のドーパント材料を用いている。

[0090] 図4は、図3の各材料を用いて有機EL素子を作製した場合における、当該各材料のエネルギーギャップと有機EL素子の発光効率との関係を示している。「F8-TPA」、「DMFL-NPB」、「NPAPF」、「TP-T1」、「NPB」及び「NPBAPF」を正孔輸送層に用いた有機EL素子の発光効率は、材料のエネルギーギャップの大きさに依存して変化しており、エネルギーギャップが大きいほど、高い発光効率を得られることが分かる。

[0091] 一方、「Poly-TPD」及び「DNTPD」を正孔輸送層に用いた有機EL素子の発光効率は、エネルギーギャップに関わらず低い発光効率となっている。そこで、高分子材料の「F8-TPA」と「Poly-TPD」を除く、図3の各材料と有機発光層のドーパント材料とを成膜レート比1:1で共蒸着した単層膜のPLQEについて測定を行った。PLQEは積分球内にセットした単層膜に対して励起光を照射した際の、材料に吸収されたフ

トン数と、材料から放出されたフォトン数との比率である。当該各材料のHOMO準位とPLQEとの関係を図5に示しているが、HOMO準位が有機発光層のドーパント材料より浅い、「DNTPD」の共蒸着膜のみでPLQEの値が低下していた。今回のPLQE評価には、選択的にドーパントを励起するために、420nmの励起光を用いた。

[0092] このときの現象について、図6を用いて説明する。図6は、正孔輸送層として「DNTPD」もしくは「Poly-TPD」を用いた場合の、有機EL素子における有機発光層と正孔輸送層とのエネルギーダイアグラムである。

[0093] 図6に示すように、有機EL素子では、正孔輸送層のHOMO準位が、有機発光層のドーパント材料のHOMO準位よりも浅い場合に、正孔輸送層と有機発光層との界面において、有機発光層のホスト材料と、正孔輸送層の材料との2分子間でエキサイプレックス(Exciplex)を形成し、発光又は消光する。

[0094] 図5において発光効率が低かった材料(「DNTPD」及び「Poly-TPD」)は、HOMO準位が浅いために、有機発光層105とエキサイプレックスを形成したと考えられる。この結果、発光効率が低くなったと考えられる。

[0095] 以上の実験結果及び評価をもとにして鋭意検討した結果、本願発明者らは、有機発光層の下地となるインターレイヤーとして、所望のエネルギーギャップ及び所望のHOMO準位を有する材料を用いることによって、有機発光層からインターレイヤーへのエネルギー移動を抑制して有機発光層とインターレイヤーとの間での消光を抑制して発光効率を改善できるという知見を得た。

[0096] そして、本願発明者らは、図1に示す有機EL素子10のように、低分子有機発光材料を用いて塗布法によって有機発光層5を形成した塗布型有機EL素子であったとしても、有機発光層5のドーパント材料よりもエネルギーギャップが大きく、かつ、有機発光層5のドーパント材料のHOMO準位よ

りも深い材料のインターレイヤー４を用いることによって、発光効率が高い有機ＥＬ素子を実現できることを見出した。

[0097] 特に、これまでは、有機発光層５の材料として低分子青色有機発光材料を用いた塗布型有機ＥＬ素子の発光効率を高くすることが難しかったが、上記のように、有機発光層５のドーパント材料よりもエネルギーギャップが大きく、かつ、有機発光層５のドーパント材料のＨＯＭＯ準位よりも深い材料のインターレイヤー４を用いることによって、優れた発光効率を有する有機ＥＬ素子を実現できることが分かった。

[0098] また、発光効率がより高い有機ＥＬ素子を実現するには、インターレイヤー４を構成する材料のエネルギーギャップは、有機発光層５のホスト材料のエネルギーギャップよりも大きくするとよいことも分かった。

[0099] この場合、図４に示すように、ある水準以上の発光効率を得るには、インターレイヤー４を構成する材料のエネルギーギャップは、 2.95 eV 以上にするるとよい。

[0100] また、図４に示すように、エネルギーギャップが 3.10 eV 以上になると発光効率が飽和すると考えられ、インターレイヤー４を構成する材料のエネルギーギャップとしては、 3.10 eV 以上であるとさらによい。

[0101] また、発光効率が高い有機ＥＬ素子を確実に得るには、インターレイヤー４を構成する材料のＨＯＭＯ準位を、有機発光層５のホスト材料のＨＯＭＯ準位と略同等にするるとよいことも分かった。

[0102] このように、本実施の形態に係る有機ＥＬ素子１０によれば、低分子有機発光材料を有機発光層５に用いた塗布型有機ＥＬ素子であったとしても、有機発光層５のドーパント材料よりもエネルギーギャップが大きく、かつ、有機発光層５のドーパント材料のＨＯＭＯ準位よりも深い材料のインターレイヤー４を用いることによって、発光効率が高い有機ＥＬ素子を実現できる。

[0103] さらに、本願発明者らは、インターレイヤーを構成する材料に着目し、有機ＥＬ素子１００の寿命特性についても評価した。

[0104] 図７は、図３の各材料を用いて有機ＥＬ素子を作製した場合における、各

有機EL素子の寿命特性を示す図である。

[0105] 図7において、「LT97」は、寿命特性を表しており、初期輝度を100%として輝度が97%に低下するのに要した時間を表している。

[0106] 図7に示すように、フルオレン及びアリールアミンの両方を含む材料（「DMFL-NPB」、「NPAPF」、「NPBAPF」、「F8-TPA」）を用いて作製した有機EL素子は、寿命が短い。一方、フルオレンを含まずアリールアミンを含む材料（「NPB」、「TPT1」）を用いて作製した有機EL素子は、寿命が長い。

[0107] 具体的には、フルオレンを含まずアリールアミンを含む材料（「NPB」、「TPT1」）を用いた場合の有機EL素子の寿命は、フルオレン及びアリールアミンを含む材料（「DMFL-NPB」、「NPAPF」、「NPBAPF」）を用いた場合の有機EL素子の寿命の約10倍以上となっている。

[0108] このように、フルオレンを含まずアリールアミンを含む材料を用いて有機EL素子を作製した場合については、寿命が改善することが分かった。

[0109] また、図3に示す材料のうち「NPB」及び「NPAPF」について、寿命評価前後の電圧－輝度特性評価した。図8は、「NPB」及び「NPAPF」を用いて有機EL素子を作製した場合における、各有機EL素子の寿命評価前後の電圧－輝度特性を示す図である。

[0110] なお、図8において、「NPB_{ini.}」及び「NPAPF_{ini.}」は、初期状態の電圧－輝度特性を示しており、「NPB_{LT75}」及び「NPAPF_{LT75}」は、初期輝度を100%として輝度が75%に低下したときの電圧－輝度特性を示している。

[0111] 図8に示すように、フルオレンを含まずアリールアミンを含む材料である「NPB」を用いて作製した有機EL素子の方が、フルオレン及びアリールアミンを含む材料である「NPAPF」を用いて作製した有機EL素子よりも、同じ輝度を得るのに必要な電圧の変化量が小さい。

[0112] 具体的には、例えば、寿命評価前後において、1000cd/m²の輝度を

得るのに必要な電圧は、フルオレンを含まずアリールアミンを含む材料である「NPB」を用いて作製した有機EL素子では、0.2V増加しているのに対し、フルオレン及びアリールアミンを含む材料である「NPAPF」を用いて作製した有機EL素子では、0.6V増加している。

[0113] 言い換えると、フルオレン及びアリールアミンを含む「NPAPF」を用いた場合の有機EL素子は、フルオレンを含まずアリールアミンを含む「NPB」を用いた場合の有機EL素子よりも、同じ輝度を得るのに必要な電圧の増加幅が大きくなっている。

[0114] これは寿命評価の通電によって、フルオレンを含まずアリールアミンを含む材料である「NPB」を用いて作製した有機EL素子では、発光層の発光能力の低下が見られているのに対し、フルオレン及びアリールアミンを含む材料である「NPAPF」を用いて作製した有機EL素子では、発光層の発光能力の低下だけでなく、「NPAPF」自体にも劣化が起こっていると考えられる。さらに具体的には、寿命評価の通電によって、「NPAPF」のフルオレン部位に劣化が起こっていると考えられる。

[0115] 以上の実験結果及び評価をもとにして鋭意検討した結果、本願発明者らは、有機発光層の下地となるインターレイヤー材料にフルオレンが含まれないように構成することによって、有機EL素子の寿命の低下を抑制できるという知見を得た。

[0116] そして、本願発明者らは、図1に示す有機EL素子10のように、低分子有機発光材料を用いて塗布法によって有機発光層5を形成した塗布型有機EL素子であったとしても、インターレイヤー4の材料として、架橋性基及び不溶化基の少なくとも1つを有し、上記の(式1)、(式2)、又は(式3)を構成単位とする材料であって、構成単位にアリールアミンを含み、かつ、フルオレンが含まれない材料を用いることによって、寿命の長い有機EL素子を実現できることを見出した。

[0117] 特に、これまでは、有機発光層5の材料として低分子青色有機発光材料を用いた塗布型有機EL素子では寿命が非常に短かったが、上記のようなイン

ターレイヤー４を用いることによって、寿命の長い有機ＥＬ素子を実現できることが分かった。

[0118] このように、本実施の形態に係る有機ＥＬ素子１０によれば、低分子有機発光材料を有機発光層５に用いた塗布型有機ＥＬ素子であったとしても、架橋性基及び不溶化基の少なくとも１つを有し、上記の（式１）、（式２）、又は（式３）を構成単位とする材料であって、構成単位にアリールアミンを含み、かつ、フルオレンを含まない材料をインターレイヤー４として用いることによって、寿命の長い有機ＥＬ素子を実現できる。この場合、インターレイヤー４の材料がクロスリンク機能を有することで、有機発光層５を塗布法で形成する際に、インターレイヤー４を溶解させてしまうことを抑制することができるので、さらに寿命の長い有機ＥＬ素子を実現できる。

[0119] さらに、本実施の形態に係る有機ＥＬ素子１０において、インターレイヤー４の材料としては、有機発光層５のドーパント材料よりもエネルギーギャップが大きく、かつ、有機発光層５のドーパント材料のＨＯＭＯ準位よりも深い材料を用いつつ、しかも、架橋性基及び不溶化基の少なくとも１つを有し、上記の（式１）、（式２）、又は（式３）を構成単位とする材料であって、構成単位にアリールアミンを含み、かつ、フルオレンを含まない材料をインターレイヤー４を用いるとよい。これにより、発光効率が高く、かつ、寿命が長い有機ＥＬ素子を実現できる。

[0120] 以上、本実施の形態に係る有機ＥＬ素子１０によれば、低分子有機発光材料を有機発光層に用いた塗布型有機ＥＬ素子であったとしても、高い素子性能を有する有機ＥＬ素子を得ることができる。

[0121] また、このように構成される有機ＥＬ素子１０は、例えば、表示装置に用いることができる。具体的には、マトリクス状に配置された複数の画素の各々に有機ＥＬ素子１０を形成することによって有機ＥＬ表示装置を実現することができる。この場合、一画素を構成する有機ＥＬ素子の有機発光層の有機発光材料を素子ごとに代えることによってＲＧＢフルカラーの有機ＥＬ表示装置を実現することができる。なお、有機ＥＬ表示装置としては、パッシ

ブマトリクス駆動方式及びアクティブマトリクス駆動方式のいずれの駆動方式であってもよい。

[0122] (その他変形例等)

以上、有機EL素子及び表示装置について、実施の形態に基づいて説明したが、本開示の技術は、上記実施の形態に限定されるものではない。

[0123] 例えば、上記実施の形態では、低分子材料からなる有機発光層5は、塗布法によって形成したが、蒸着法によって形成してもよい。

[0124] また、上記実施の形態において、第1電極2はスパッタリング法で形成し、正孔注入層3は塗布法もしくはスパッタリング法で形成し、電子輸送層6、電子注入層7及び第2電極8は蒸着法で形成したが、これに限るものではない。

[0125] また、上記実施の形態では、有機EL素子を表示装置に用いたが、上記実施の形態における有機EL素子10は、表示装置以外の発光装置に用いることができる。例えば、有機EL素子は、有機EL照明パネル等の照明装置に用いることができる。

[0126] その他、各実施の形態に対して当業者が思いつく各種変形を施して得られる形態や、本開示の趣旨を逸脱しない範囲で各実施の形態における構成要素及び機能を任意に組み合わせることで実現される形態も本開示に含まれる。

産業上の利用可能性

[0127] 本開示の技術は、有機EL素子及び表示装置に有用であり、例えば、テレビ受信機、モニタディスプレイ、デジタルサイネージ、携帯端末又はタブレット端末等のディスプレイデバイスや、シーリングライト又は間接照明等の照明デバイス等、様々な発光デバイスに広く利用することができる。

符号の説明

[0128] 10、100 有機EL素子

1、101 基板

2、102 第1電極

3、103 正孔注入層

- 4 インターレイヤー
- 5、105 有機発光層
- 6、106 電子輸送層
- 7、107 電子注入層
- 8、108 第2電極
- 104 正孔輸送層

請求の範囲

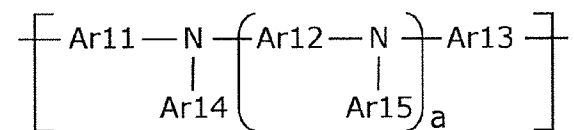
- [請求項1] 第1電極と、
前記第1電極の上方に形成されたインターレイヤーと、
前記インターレイヤーを下地として形成された有機発光層と、
前記有機発光層の上方に形成された第2電極とを備え、
前記有機発光層は、少なくともホスト材料とドーパント材料とを含み、
前記インターレイヤーは、前記ドーパント材料よりもエネルギーギャップが大きく、かつ、前記ドーパント材料のHOMO準位よりも深い材料で構成されている
有機EL素子。
- [請求項2] 前記ホスト材料及び前記ドーパント材料は、低分子材料である
請求項1に記載の有機EL素子。
- [請求項3] 前記インターレイヤーを構成する材料のエネルギーギャップは、前記ホスト材料のエネルギーギャップよりも大きい
請求項1又は2に記載の有機EL素子。
- [請求項4] 前記インターレイヤーを構成する材料のエネルギーギャップは、2.95 eV以上である
請求項3に記載の有機EL素子。
- [請求項5] 前記インターレイヤーを構成する材料のエネルギーギャップは、3.10 eV以上である
請求項3に記載の有機EL素子。
- [請求項6] 前記インターレイヤーを構成する材料のHOMO準位は、前記ホスト材料のHOMO準位と同等である
請求項3～5のいずれか1項に記載の有機EL素子。
- [請求項7] 前記インターレイヤーは、クロスリンク機能を有し、塗布法で形成される
請求項3～6のいずれか1項に記載の有機EL素子。

[請求項8] 前記有機発光層は、塗布法で形成される
請求項7に記載の有機EL素子。

[請求項9] 第1電極と、
前記第1電極の上方に形成されたインターレイヤーと、
前記インターレイヤーを下地として形成された有機発光層と、
前記有機発光層の上方に形成された第2電極とを備え、
前記有機発光層は、少なくともホスト材料とドーパント材料とを含み、
前記インターレイヤーの材料は、架橋性基及び不溶化基の少なくとも1つを有し、(式1)を構成単位とする材料であって、アリールアミンを含み、かつ、フルオレンを含まない
有機EL素子。

[化1]

(式1)



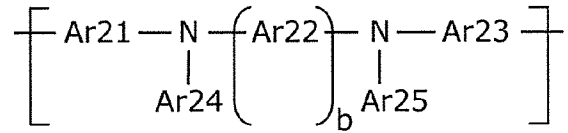
(式1)において、Ar11～Ar15は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、aは0から3の整数を表している。

[請求項10] 第1電極と、
前記第1電極の上方に形成されたインターレイヤーと、
前記インターレイヤーを下地として形成された有機発光層と、
前記有機発光層の上方に形成された第2電極とを備え、
前記有機発光層は、少なくともホスト材料とドーパント材料とを含み、
前記インターレイヤーの材料は、架橋性基及び不溶化基の少なくとも1つを有し、(式2)を構成単位とする材料であって、アリールアミンを含み、かつ、フルオレンを含まない

有機EL素子。

[化2]

(式2)



(式2)において、Ar21～Ar25は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、bは0から3の整数を表している。

[請求項11]

第1電極と、

前記第1電極の上方に形成されたインターレイヤーと、

前記インターレイヤーを下地として形成された有機発光層と、

前記有機発光層の上方に形成された第2電極とを備え、

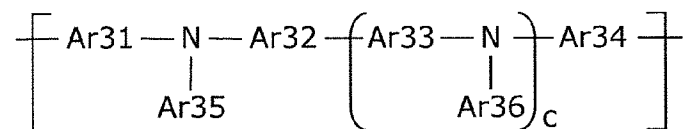
前記有機発光層は、少なくともホスト材料とドーパント材料とを含み、

前記インターレイヤーの材料は、架橋性基及び不溶化基の少なくとも1つを有し、(式3)を構成単位とする材料であって、アリアルアミンを含み、かつ、フルオレンを含まない

有機EL素子。

[化3]

(式3)



(式3)において、Ar31～Ar36は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、cは0から3の整数を表している。

[請求項12]

前記ホスト材料及び前記ドーパント材料は、低分子材料である

請求項9～11のいずれか1項に記載の有機EL素子。

[請求項13] 前記芳香族基は、縮合多環構造を含む
請求項12に記載の有機EL素子。

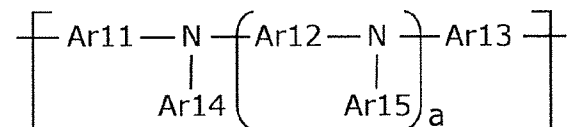
[請求項14] 前記芳香族基は、ヘテロ環構造を含む
請求項12に記載の有機EL素子。

[請求項15] 前記有機発光層は、塗布法で形成される
請求項9～14のいずれか1項に記載の有機EL素子。

[請求項16] 前記インターレイヤーの材料は、架橋性基及び不溶化基の少なくとも1つを有し、(式1)を構成単位とする材料であって、アリールアミンを含み、かつ、フルオレンを含まない
請求項1～6のいずれか1項に記載の有機EL素子。

[化4]

(式1)

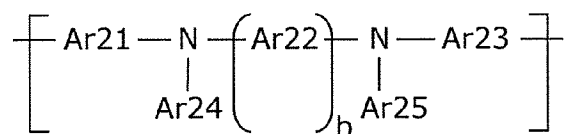


(式1)において、Ar11～Ar15は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、aは0から3の整数を表している。

[請求項17] 前記インターレイヤーの材料は、架橋性基及び不溶化基の少なくとも1つを有し、(式2)を構成単位とする材料であって、アリールアミンを含み、かつ、フルオレンを含まない
請求項1～6のいずれか1項に記載の有機EL素子。

[化5]

(式2)



(式2)において、Ar21～Ar25は、同一又は異なった、置

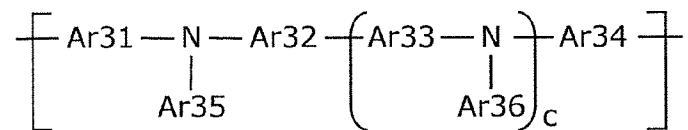
換又は無置換の芳香族基を表し、 b は0から3の整数を表している。

[請求項18] 前記インターレイヤーの材料は、架橋性基及び不溶化基の少なくとも1つを有し、(式3)を構成単位とする材料であって、アリアルアミンを含み、かつ、フルオレンを含まない

請求項1～6のいずれか1項に記載の有機EL素子。

[化6]

(式3)



(式3)において、 $\text{Ar31} \sim \text{Ar36}$ は、同一又は異なった、置換又は無置換の芳香族基を表し、 c は0から3の整数を表している。

[請求項19] 前記芳香族基は、縮合多環構造を含む

請求項16～18のいずれか1項に記載の有機EL素子。

[請求項20] 前記芳香族基は、ヘテロ環構造を含む

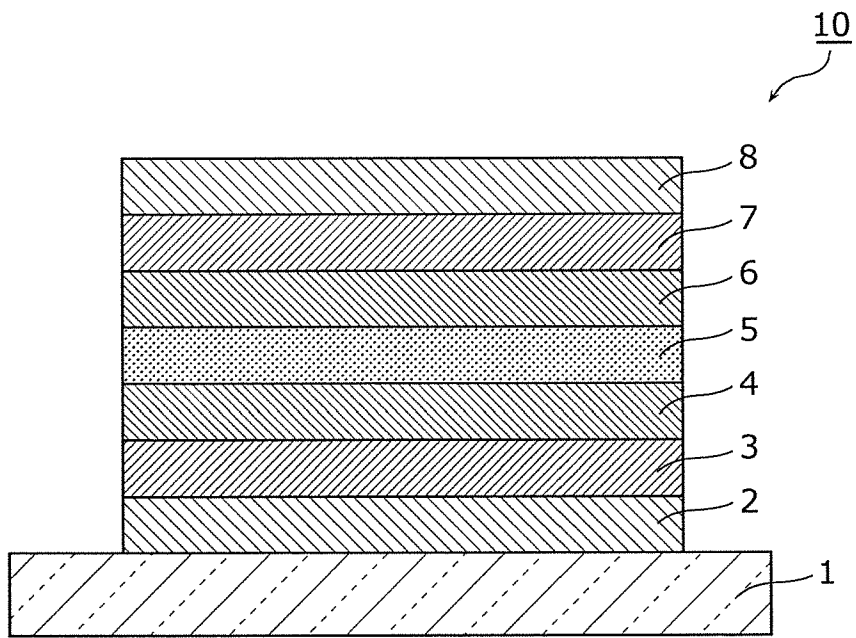
請求項16～18のいずれか1項に記載の有機EL素子。

[請求項21] 前記有機発光層は、塗布法で形成される

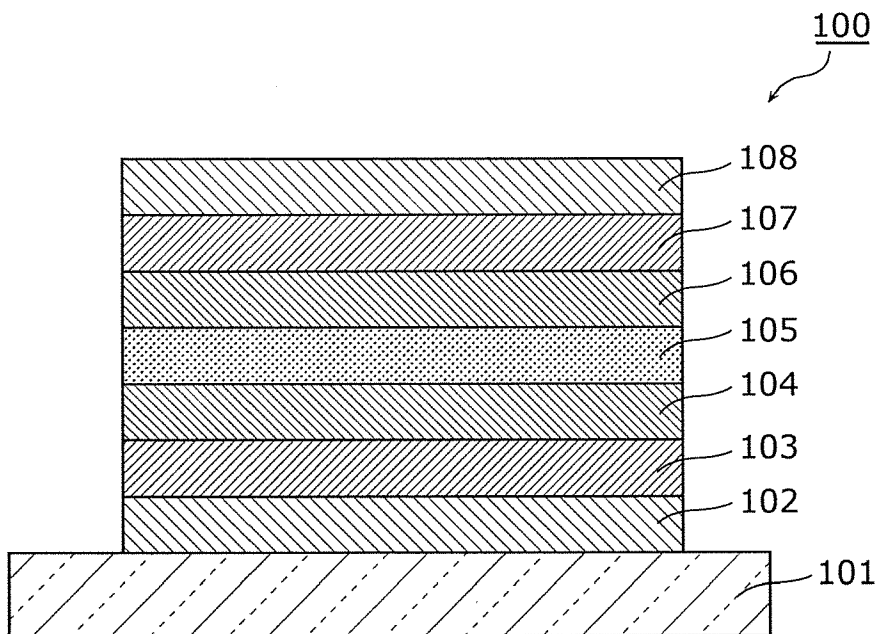
請求項16～20のいずれか1項に記載の有機EL素子。

[請求項22] 請求項1～21のいずれか1項に記載の有機EL素子を備える表示装置。

[図1]



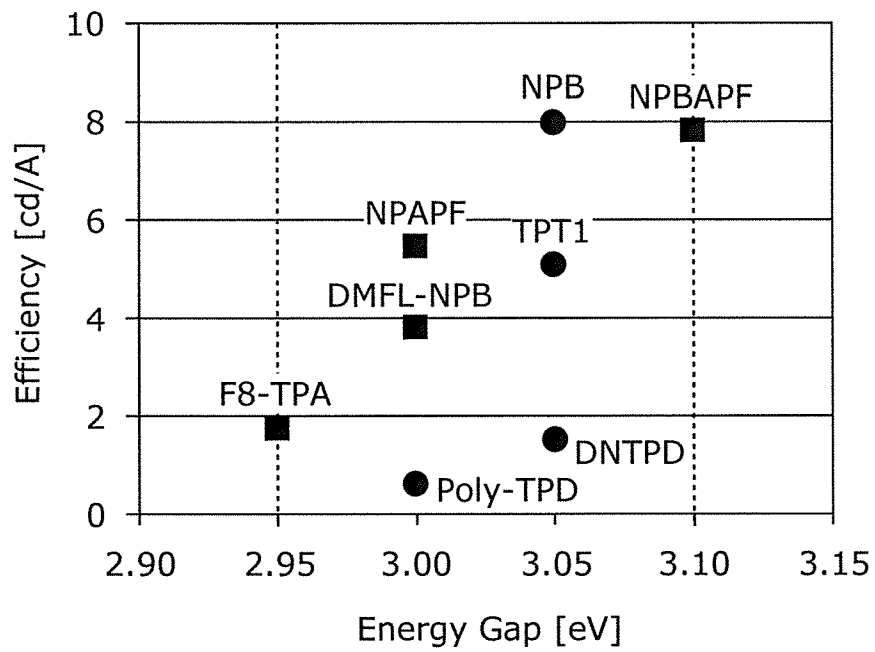
[図2]



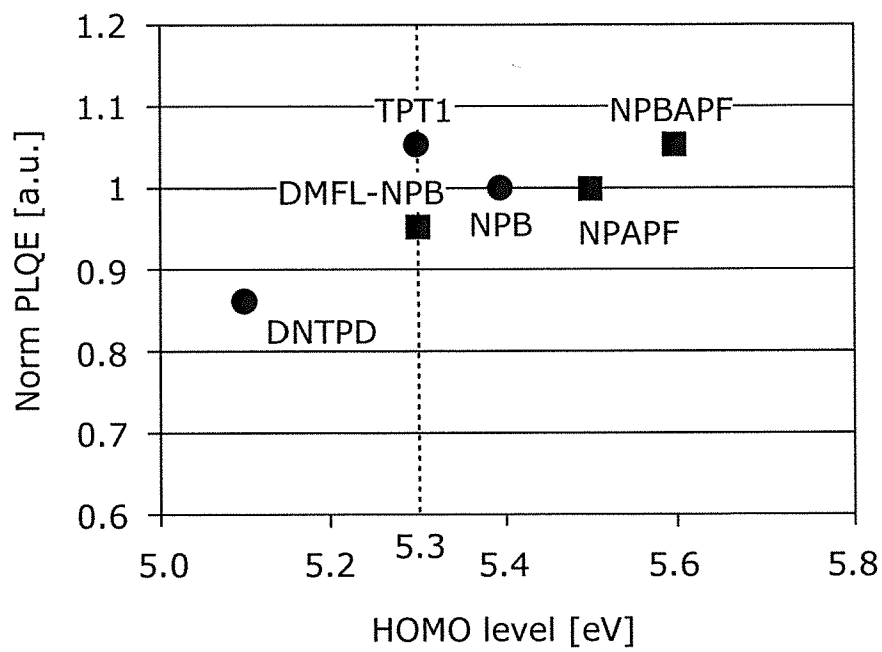
[図3]

	アリアルアミン				フルオレン+アリアルアミン			
材料名	NPB	TPT1	DNTPD	Poly-TPD	DMFL-NPB	NPAPF	NPBAPF	F8-TPA
成膜プロセス	蒸着			塗布	蒸着			塗布
エネルギーギャップ(eV)	3.05	3.05	3.05	3.00	3.00	3.00	3.10	2.95
HOMO準位(eV)	5.4	5.3	5.1	5.1	5.3	5.5	5.6	5.4

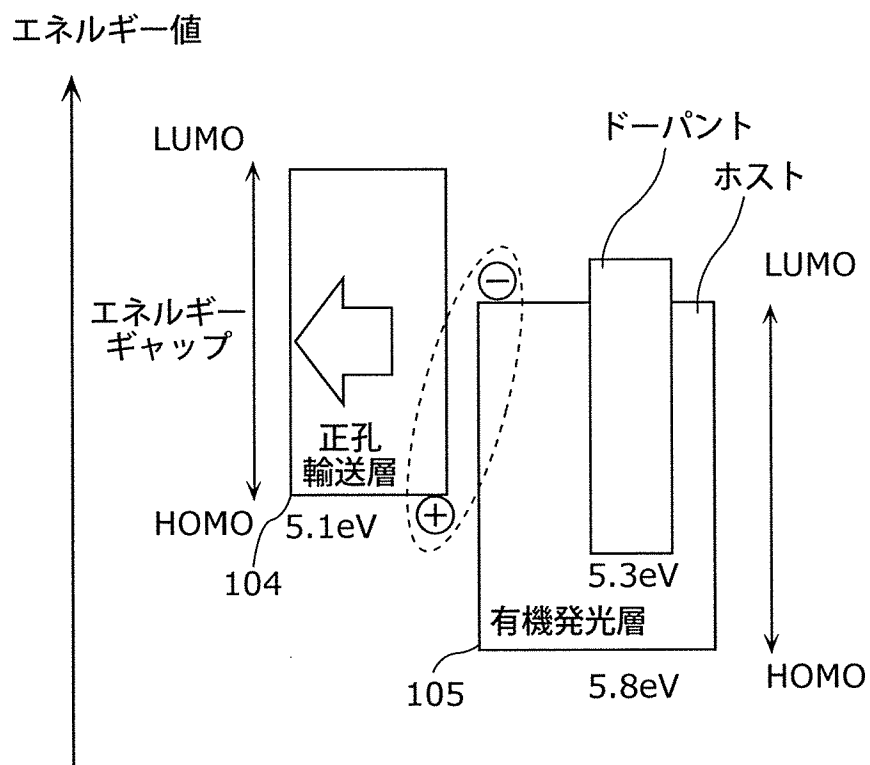
[図4]



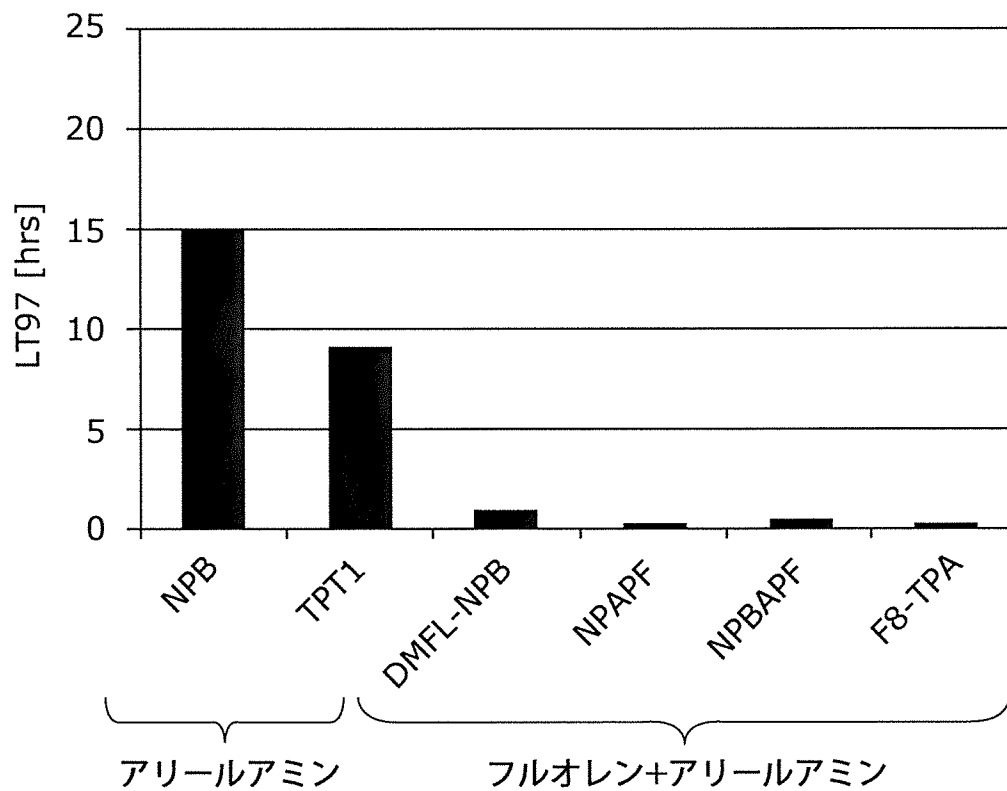
[図5]



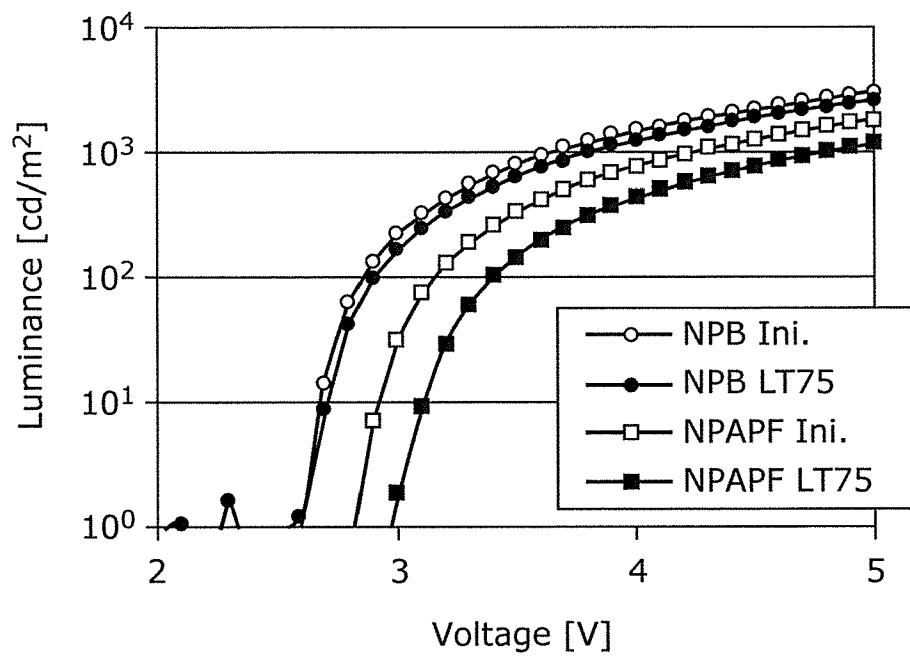
[図6]



[図7]



[図8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/005748

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L51/50(2006.01)i, G09F9/30(2006.01)i, H01L27/32(2006.01)i, H05B33/10(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L51/50, G09F9/30, H01L27/32, H05B33/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 2011/071169 A1 (Mitsubishi Chemical Corp.), 16 June 2011 (16.06.2011), claims; paragraphs [0001], [0061] to [0081], [0129], [0370] to [0392] & US 2012/0286653 A1 claims; paragraphs [0001], [0081] to [0099], [0141], [0357] to [0372] & EP 2511969 A1	1-8, 22 16-21
X Y	JP 2014-187130 A (Nippon Hoso Kyokai), 02 October 2014 (02.10.2014), paragraphs [0001], [0097] to [0117] (Family: none)	1-6, 22 16-21

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
08 February 2016 (08.02.16)

Date of mailing of the international search report
16 February 2016 (16.02.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/005748

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2007/0069636 A1 (Stelios A. Choulis, et al.), 29 March 2007 (29.03.2007), fig. 4 & JP 2007-96322 A & EP 1770799 A2	1-6, 22
X Y	JP 2010-189454 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 02 September 2010 (02.09.2010), claims; paragraphs [0033] to [0035], [0051] to [0054], [0084], [0088] to [0092], [0099] to [0103], [0108] (Family: none)	9-15, 22 16-21
Y	JP 2005-285749 A (Tosoh Corp.), 13 October 2005 (13.10.2005), claims; paragraphs [0009], [0022], [0027], [0070] to [0072] (Family: none)	16-21

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, G09F9/30(2006.01)i, H01L27/32(2006.01)i, H05B33/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01L51/50, G09F9/30, H01L27/32, H05B33/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y	WO 2011/071169 A1（三菱化学株式会社）2011.06.16, [特許請求の範囲], 段落[0001], [0061]-[0081], [0129], [0370]-[0392] & US 2012/0286653 A1 Claims, [0001], [0081]-[0099], [0141], [0357]-[0372] & EP 2511969 A1	1-8, 22 16-21
X Y	JP 2014-187130 A（日本放送協会）2014.10.02, 段落[0001], [0097]-[0117]（ファミリーなし）	1-6, 22 16-21

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08.02.2016

国際調査報告の発送日

16.02.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

横川 美穂

20

4749

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	US 2007/0069636 A1 (Stelios A. Choulis, et al.) 2007.03.29, FIG. 4 & JP 2007-96322 A & EP 1770799 A2	1-6, 22
X Y	JP 2010-189454 A (三菱化学株式会社) 2010.09.02, [特許請求の範囲], 段落[0033]-[0035], [0051]-[0054], [0084], [0088]-[0092], [0099]-[0103], [0108] (ファミリーなし)	9-15, 22 16-21
Y	JP 2005-285749 A (東ソー株式会社) 2005.10.13, [特許請求の範囲], 段落[0009], [0022], [0027], [0070]-[0072] (ファミリーなし)	16-21