

(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
2013年9月26日(26.09.2013)



(10) 国際公開番号
WO 2013/141057 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/12 (2006.01) C07D 409/14 (2006.01)
C07D 213/06 (2006.01) C07D 519/00 (2006.01)
C07D 213/22 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C07D 213/53 (2006.01) H05B 33/28 (2006.01)
C07D 401/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/056616
- (22) 国際出願日: 2013年3月11日(11.03.2013)
- (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 2012-064229 2012年3月21日(21.03.2012) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタ株式会社(Konica Minolta, Inc.) [JP/JP]; 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (71) 出願人(米国についてのみ): 石代 宏(ISHIDAI Hiroshi) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタアドバンストレイヤー株式会社内 Tokyo (JP). 波木井 健(HAKII Takeshi) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタアドバンストレ

イヤー株式会社内 Tokyo (JP). 木下 敏幸(KINOSHITA Toshiyuki) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタアドバンストレイヤー株式会社内 Tokyo (JP). 吉田 和央(YOSHIDA Kazuhiro) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタアドバンストレイヤー株式会社内 Tokyo (JP). 辻村 隆俊(TSUJIMURA Takatoshi) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタアドバンストレイヤー株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人信友国際特許事務所(SHIN-YU INTERNATIONAL PATENT FIRM); 〒1510073 東京都渋谷区笹塚2-1-6 笹塚センタービル Tokyo (JP).

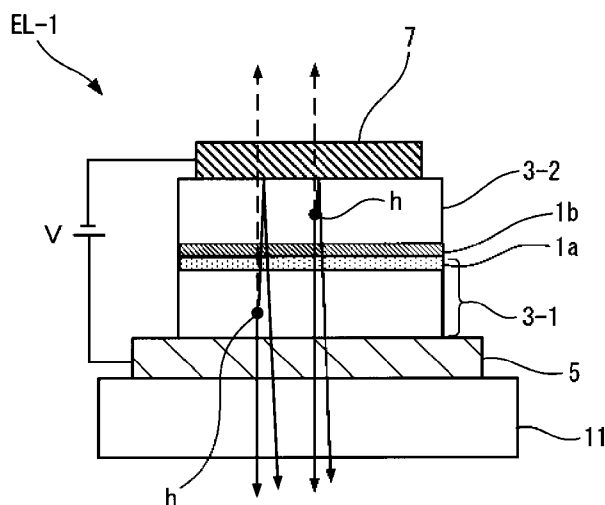
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, 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.

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機電界発光素子

FIG. 2



素含有層に隣接して配置されている。

(57) Abstract: An organic electroluminescence element, provided with: a first electrode and a second electrode; a plurality of light emission units, each of which has a light-emitting layer comprising an organic material, and which are overlappingly arranged between the first electrode and the second electrode; and a transparent electroconductive layer arranged between the light emission units. The transparent electroconductive layer comprises silver or an alloy having silver as a principal component, and is arranged adjacent to a nitrogen-containing layer comprising a compound containing nitrogen atoms.

(57) 要約: 第1電極および第2電極と、有機材料を用いて構成された発光層を有して第1電極と第2電極との間に重ねて配置された複数の発光ユニットと、これらの発光ユニット間に配置された透明導電層とを備えた有機電界発光素子である。透明導電層は、銀または銀を主成分とした合金を用いて構成されると共に、窒素原子を含有する化合物を用いて構成された窒



(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, 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),

OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, 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：有機電界発光素子

技術分野

[0001] 本発明は、有機電界発光素子に関し、特に是有機材料を用いて構成された発光層を有する発光ユニットを複数層重ねて配置したタンデム構造の有機電界発光素子に関する。

背景技術

[0002] 有機材料のエレクトロルミネッセンス (electroluminescence：以下ELと記す) を利用した有機電界発光素子 (いわゆる有機EL素子) は、発光効率と駆動寿命がトレードオフの関係にある。そのため有機材料を用いて構成された発光層を含む発光機能層を、1つの発光ユニットとし、中間層を介して複数の発光ユニットを積層することにより、発光効率を確保しつつも長寿命化を図る、タンデム構造が提案されている。このようなタンデム構造における中間層としては、例えば下記特許文献1～6において各構成が開示されている。

[0003] 「特許文献1」には、マグネシウム (Mg) を主成分として銀 (Ag) を含有する導電層を浮遊状態で用いた構成が開示されている。「特許文献2」には、Mg、Mg/Ag、さらにはヒ素 (As) のような仕事関数が小さい金属層と、酸化インジウムスズ ($\text{SnO}_2 - \text{In}_2\text{O}_3$: Indium Tin Oxide : ITO) との積層体を中間電極とする構成が開示されている。「特許文献3」には、電氣的絶縁層で構成された電荷発生層を中間層として用いる構成や、電子受容性化合物がドープされたホール注入層を電荷発生層の陰極側に接する中間層として形成する構成が開示されている。「特許文献4」には、無機または有機の半導体材料中の添加物 (電子供与性または電子吸引性) の組成比を膜厚方向で変化させた中間層が開示されている。「特許文献5」には、電子注入層、金属-有機混合層 (例えばAg-Alq3)、および正孔注入層の3層を積層して中間層とする構成が開示されている。「特許文献6」に

は、ITOのような透明導電膜を電荷発生層（すなわち中間層）として用い、電界発光層において先の電荷発生層に最も近い層にベンゾオキサゾール誘導体やピリジン誘導体などのエッチングされにくい材料を用いる構成が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：US 6 3 3 7 4 9 2 (B 1)

特許文献2：特許 3 4 9 6 6 8 1 号公報

特許文献3：特開 2 0 0 3 - 2 7 2 8 6 0 号公報

特許文献4：特開 2 0 0 5 - 1 3 5 6 0 0 号公報

特許文献5：特開 2 0 0 6 - 3 3 2 0 4 8 号公報

特許文献6：特開 2 0 0 5 - 3 4 0 1 8 7 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 以上のように、タンデム構造の有機電界発光素子に対しては、様々な構成が提案されている。しかしながら、以上のような各構成であっても、実用化するに足る十分な発光効率と寿命特性とを得ることは困難である。

[0006] そこで本発明は、発光効率の向上と寿命特性の向上との両立を図ることが可能なタンデム構造の有機電界発光素子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

[0007] 本発明の上記目的は、以下の構成により達成される。

[0008] 1. 一对の電極と、有機材料を用いて構成された発光層を有して前記電極間に重ねて配置された複数の発光ユニットと、前記発光ユニット間に配置された導電層とを備え、

前記電極および前記導電層のうちの少なくとも1つは、銀または銀を主成分とした合金を用いた透明導電層として構成されると共に、窒素原子を含有する化合物を用いて構成された窒素含有層に隣接して配置されている有機電

界発光素子。

[0009] 2. 前記化合物は、下記式(1)で表される銀との有効作用エネルギー ΔE_{ef} が下記式(2)を満たす前記1に記載の有機電界発光素子。

[0010] [数1]

$$\Delta E_{ef} = n \times \Delta E / s \quad \cdots \text{式 (1)}$$

n : 銀 (Ag) と安定的に結合する化合物中の窒素原子 (N) の数

ΔE : 窒素原子 (N) と銀 (Ag) との相互作用エネルギー

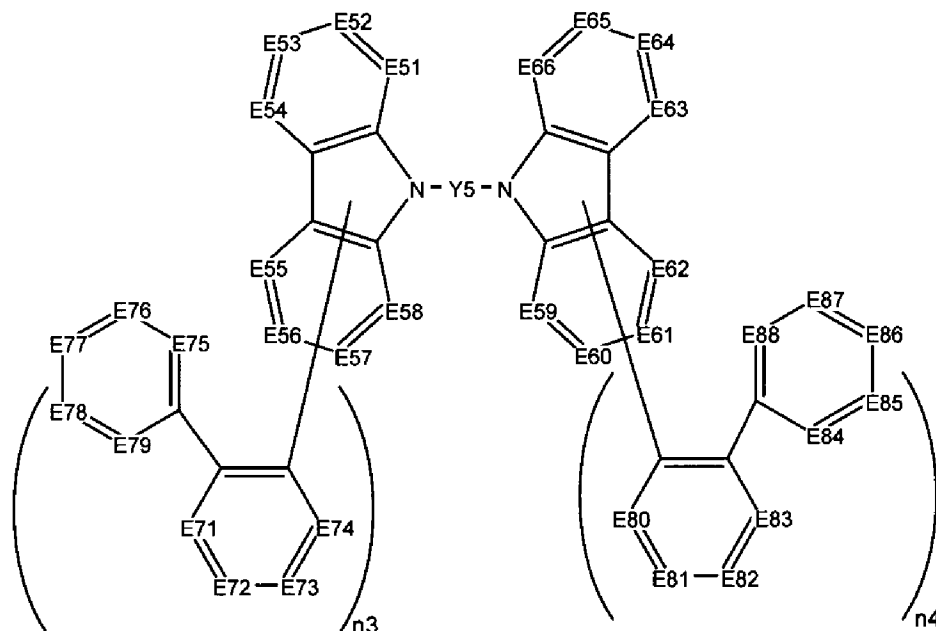
s : 化合物の表面積

$$-0.5 \leq \Delta E_{ef} \leq -0.10 [\text{kcal/mol} \cdot \text{\AA}^2] \quad \cdots \text{式 (2)}$$

[0011] 3. 前記化合物は、下記一般式(1)で表される化合物を含む前記1または2に記載の有機電界発光素子。

[0012] [化1]

一般式(1)



[0013] ただし一般式(1)中、Y5は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基またはそれらの組み合わせからなる2価の連結基を表す。

E51～E66、E71～E88は、各々C(R3)＝または－N＝を

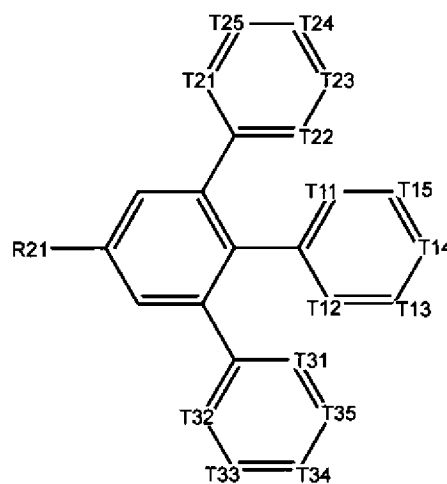
表し、 R_3 は水素原子または置換基を表す。

また $E_{71} \sim E_{79}$ の少なくとも 1 つおよび $E_{80} \sim E_{88}$ の少なくとも 1 つは $-N=$ を表す。 n_3 および n_4 は $0 \sim 4$ の整数を表すが、 $n_3 + n_4$ は 2 以上の整数である。

[0014] 4. 前記化合物は、下記一般式 (2) で表される化合物を含む前記 1 または 2 に記載の有機電界発光素子。

[0015] [化2]

一般式 (2)



[0016] ただし一般式 (2) 中、
 R_{21} は置換基を表し、
 T_{11} 、 T_{12} 、 $T_{21} \sim T_{25}$ 、 $T_{31} \sim T_{35}$ は、各々 $-C(R_{22})=$ または $-N=$ を表し、
 $T_{13} \sim T_{15}$ は、各々 $-C(R_{22})=$ を表し、
 前記 R_{22} は、水素原子 (H) または置換基を表し、
 T_{11} および T_{12} のうち少なくとも 1 つは $-N=$ であり、
 $T_{21} \sim T_{25}$ のうち少なくとも 1 つは $-N=$ であり、
 $T_{31} \sim T_{35}$ のうち少なくとも 1 つは $-N=$ である。

[0017] 5. 前記一対の電極のみに電圧を印加して駆動される前記 1 ～ 4 の何れかに記載の有機電界発光素子。

[0018] 6. 前記一対の電極および前記導電層に電圧を印加して駆動される前記 1

～４の何れかに記載の有機電界発光素子。

[0019] 以上のように構成された本発明の有機電界発光素子は、電極または発光ユニット間の導電層として、銀または銀を主成分とした合金を用いた透明導電層を用いており、この透明導電層に対して、窒素原子を含有する化合物を用いて構成された窒素含有層を隣接させた構成である。これにより、窒素含有層に隣接させて透明導電層を成膜する際には、透明導電層を構成する銀原子が窒素含有層を構成する窒素原子を含んだ化合物と相互作用し、銀原子の窒素含有層表面においての拡散距離が減少し、銀の凝集が抑えられる。このため、一般的には核成長型（V o l u m e r－W e b e r：VW型）での膜成長により島状に孤立し易い銀薄膜が、単層成長型（F r a n k－v a n d e r M e r w e：FM型）の膜成長によって成膜されるようになる。したがって、薄い膜厚でありながらも、均一な膜厚の透明導電層が得られるようになる。この結果、より薄い膜厚として光透過率を保ちつつも、導電性が確保された透明導電層を、電極または発光ユニット間の導電層として用いることができる。

発明の効果

[0020] 以上説明したように本発明によれば、より薄い膜厚として光透過率を保ちつつも、導電性が確保された透明導電層を、電極または発光ユニット間の導電層として用いることができるため、タンデム構造の有機電界発光素子においての発光効率の向上と寿命特性の向上との両立を図ることが可能になる。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]本発明の有機電界発光素子に用いる透明導電層の構成を示す断面模式図である。

[図2]第１実施形態の有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図3]第１実施形態の変形例１を説明するための断面模式図である。

[図4]第１実施形態の変形例２を説明するための断面模式図である。

[図5]第２実施形態の有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図6]第３実施形態の有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図7]第4実施形態の有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図8]第5実施形態の有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図9]第6実施形態の有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図10]実施例1で作製した透明電極における有効作用エネルギー ΔE_{ef} とシート抵抗との関係を示すグラフである。

[図11]実施例2で作製した有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図12]実施例2の比較例の構成を示す断面模式図である。

[図13]実施例3で作製した有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図14]実施例3の比較例の構成を示す断面模式図である。

[図15]実施例4で作製した有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図16]実施例4の比較例の構成を示す断面模式図である。

[図17]実施例5で作製した有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

[図18]実施例6で作製した有機電界発光素子の構成を示す断面模式図である。

発明を実施するための形態

[0022] 以下、本発明のタンデム構造の有機電界発光素子に関する実施の形態を、図面に基づいて次に示す順に説明する。

1. 有機電界発光素子に用いる透明導電層の構成
2. 第1実施形態（2つの発光ユニット間に透明導電層を設けた例）
3. 第1実施形態の変形例1
4. 第1実施形態の変形例2
5. 第2実施形態（発光ユニット間の導電層および第2電極を透明導電層とした例）
6. 第3実施形態（発光ユニット間の導電層および第1電極を透明導電層と

した例)

7. 第4実施形態(発光ユニット間の導電層および2つの電極を透明導電層とした例)

8. 第5実施形態(3つ以上の発光ユニット間に透明導電層を設けた例)

9. 第6実施形態(3つ以上の発光ユニット間のうちの1箇所透明導電層を設けた例)

10. 有機電界発光素子の用途

11. 照明装置－1

12. 照明装置－2

[0023] ≪1. 有機電界発光素子に用いる透明導電層の構成≫

図1は、タンデム構造の有機電界発光素子に用いる透明導電層の構成を示す断面模式図である。この図に示すように、透明導電層1bは、窒素含有層1aに隣接して設けられていることを特徴としている。この透明導電層1bは、銀(Ag)または銀を主成分とした合金を用いて構成されている。また窒素含有層1aは、窒素原子を含有する化合物を用いて構成され、特に透明導電層1bを構成する主材料である銀との間に、以降に説明する有効作用エネルギー ΔE_{ef} が特定の関係を有する化合物を用いて構成された層であることを特徴としている。

[0024] <窒素含有層1a>

窒素含有層1aは、窒素原子を含有する化合物のうち、透明導電層1bを構成する主材料である銀(Ag)との間に、特定の関係を有する化合物を用いて構成された層である。ここでは、化合物と銀との間に相互に作用するエネルギーとして、下記式(1)で示される有効作用エネルギー ΔE_{ef} を定義した。そして、この有効作用エネルギー ΔE_{ef} が下記式(2)を満たす、特定の関係を有する化合物を用いて窒素含有層1aを構成する。

[0025]

[数2]

$$\Delta E_{ef} = n \times \Delta E / s \quad \cdots \text{式 (1)}$$

n : 銀 (Ag) と安定的に結合する化合物中の窒素原子 (N) の数

ΔE : 窒素原子 (N) と銀 (Ag) との相互作用エネルギー

s : 化合物の表面積

$$-0.5 \leq \Delta E_{ef} \leq -0.10 [\text{kcal/mol} \cdot \text{\AA}^2] \quad \cdots \text{式 (2)}$$

[0026] 銀と安定的に結合する化合物中の窒素原子の数 [n] とは、化合物中に含有される窒素原子のうちから、銀と安定的に結合する窒素原子のみを、特定の窒素原子として選択してカウントした数である。選択対象となる窒素原子は、化合物中に含まれる全ての窒素原子であり、複素環を構成する窒素原子に限定されることはない。このような化合物中に含まれる全ての窒素原子の中からの、特定の窒素原子の選択は、例えば分子軌道計算法によって算出される銀と化合物中の窒素原子との結合距離[r (Ag · N)]を指標とするか、または化合物中の窒素原子を含む環に対して当該窒素原子と銀とのなす角度、すなわち二面角 [D] を指標として次のように行われる。尚、分子軌道計算法は、例えばGaussian 03(Gaussian, Inc., Wallingford, CT, 2003)を用いて行われる。

[0027] 先ず、結合距離[r (Ag · N)]を指標とする場合、各化合物の立体的な構造を考慮し、当該化合物において窒素原子と銀とが安定的に結合する距離を、「安定結合距離」として設定しておく。そして、当該化合物に含有される各窒素原子について、分子軌道計算法を用いて結合距離[r (Ag · N)]を算出する。そして算出された結合距離[r (Ag · N)]が、「安定結合距離」と近い値を示す窒素原子を、特定の窒素原子として選択する。このような窒素原子の選択は、複素環を構成する窒素原子が多く含まれる化合物、および複素環を構成しない窒素原子が多く含まれる化合物に対して適用される。

[0028] また二面角 [D] を指標とする場合、分子軌道計算法を用いて上述した二

面角 [D] を算出する。そして算出された二面角 [D] が $D < 10$ 度をなす窒素原子を、特定の窒素原子として選択する。このような窒素原子の選択は、複素環を構成する窒素原子が多く含まれる化合物に対して適用される。

[0029] また、銀 (Ag) と化合物中における窒素 (N) との相互作用エネルギー $[\Delta E]$ は、分子軌道計算法によって算出することができ、上記のように選択された窒素と銀との間の相互作用エネルギーである。

[0030] さらに表面積 [s] は、Tencube/WM (株式会社テンキューブ製) を用いて、上記最適化された構造に対して算出される。

[0031] 以上のように定義される有効作用エネルギー ΔE_{ef} は、下記式 (3) を満たす範囲であればさらに好ましい。

[0032] [数3]

$$\Delta E_{ef} \leq -0.20 [\text{kcal/mol} \cdot \text{\AA}^2] \quad \cdots \text{式 (3)}$$

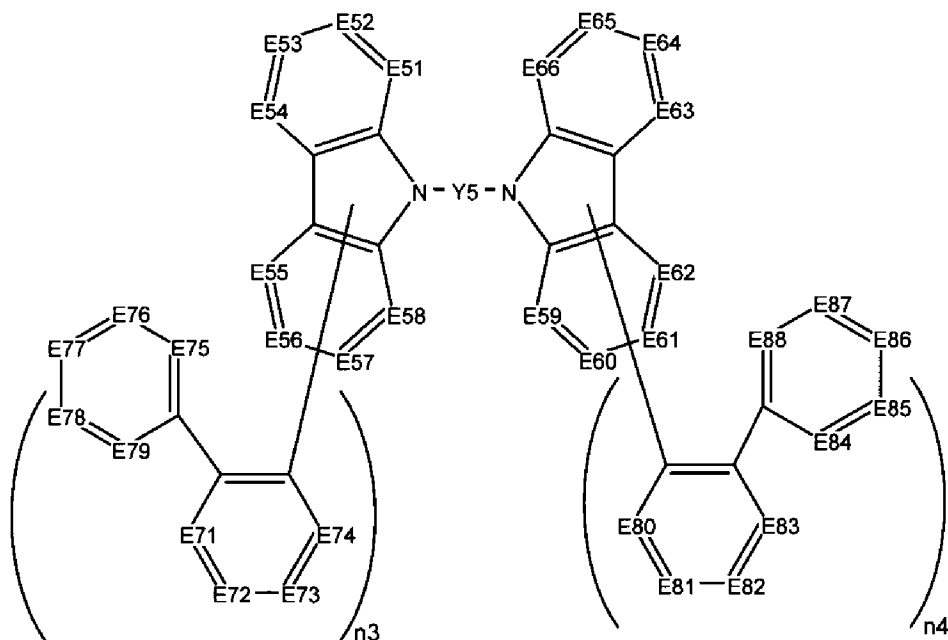
[0033] また窒素含有層 1a を構成する窒素原子を含有する化合物としては、例えば窒素原子 (N) をヘテロ原子とした複素環を含む化合物が用いられる。窒素原子 (N) をヘテロ原子とした複素環としては、アジリジン、アジリン、アゼチジン、アゼト、アゾリジン、アゾール、アジナン、ピリジン、アゼパン、アゼピン、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、チアゾール、イミダゾリン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、モルホリン、チアジン、インドール、イソインドール、ベンゾイミダゾール、プリン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、カルバゾール、ベンゾ-C-シンノリン、ポルフィリン、クロリン、コリン等が挙げられる。中でも、1つまたは2つの窒素原子を含有して構成される複素環化合物が例示される。

[0034] また窒素原子をヘテロ原子とした複素環を有する化合物として、好ましく用いられる化合物は、例えば下記一般式 (1) で表される化合物や、以降に示す一般式 (2) で表される化合物が例示される。本発明において、透明導電層 1b に隣接して設けた窒素含有層 1a は、上述した式 (1) または式 (

2) に当てはまる化合物の中から、これらの一般式 (1) または一般式 (2) で示される化合物が選択して用いられる。

[0035] [化3]

一般式 (1)



[0036] 上記一般式 (1) の式中、Y5 は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基またはそれらの組み合わせからなる 2 価の連結基を表す。E51～E66、E71～E88 は、各々 C(R3) = または -N= を表し、R3 は水素原子または置換基を表す。但し、E71～E79 の少なくとも 1 つ及び E80～E88 の少なくとも 1 つは -N= を表す。n3 及び n4 は 0～4 の整数を表すが、n3 + n4 は 2 以上の整数である。

[0037] 一般式 (1) において、Y5 で表されるアリーレン基としては、例えば、*o*-フェニレン基、*p*-フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、ナフタセンジイル基、ピレンジイル基、ナフチルナフタレンジイル基、ビフェニルジイル基 (例えば、[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジイル基、3, 3'-ビフェニルジイル基、3, 6-ビフェニルジイル基等)、テルフェニルジイル基、クアテルフェニルジイル基、キンクフェニルジイル基、セキシフェニルジイル基、セプチフェニルジイル基、オクチフェ

ニルジイル基、ノビフェニルジイル基、デシフェニルジイル基等が例示される。

[0038] また一般式(1)において、Y5で表されるヘテロアリーレン基としては、例えば、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環(モノアザカルボリン環ともいい、カルボリン環を構成する炭素原子のひとつが窒素原子で置き換わった構成の環構成を示す)、トリアゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピラジン環、キノキサリン環、チオフェン環、オキサジアゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、インドール環からなる群から導出される2価の基等が例示される。

[0039] Y5で表されるアリーレン基、ヘテロアリーレン基またはそれらの組み合わせからなる2価の連結基の好ましい態様としては、ヘテロアリーレン基の中でも、3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基を含むことが好ましく、また、当該3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基としては、ジベンゾフラン環から導出される基またはジベンゾチオフェン環から導出される基が好ましい。

[0040] 一般式(1)において、E51～E66、E71～E88で各々表される-C(R3)-のR3で表される置換基の例としては、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(芳香族炭素環基、アリーール基等ともいい、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、ビフェニリル基)、芳香族複素環基(例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル

基、チアゾリル基、キナゾリニル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する任意の炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、フタラジニル基等）、複素環基（例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホリル基、オキサゾリジル基等）、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（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また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、ピペリジル基（ピペリジニル基ともいう）、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジニル基等）、ハロゲン原子（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)、リン酸エステル基(例えば、ジヘキシルホスホリル基等)、亜リン酸エステル基(例えばジフェニルホスフィニル基等)、ホスホノ基等が挙げられる。

[0041] これらの置換基の一部は、上記の置換基によってさらに置換されていてもよい。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

[0042] 一般式(1)において、E 5 1～E 5 8のうちの6つ以上及びE 5 9～E 6 6のうちの6つ以上が、各々 $-C(R_3)-$ で表されることが好ましい。

[0043] 一般式(1)において、E 7 5～E 7 9の少なくとも1つ及びE 8 4～E 8 8の少なくとも1つが $-N=$ を表すことが好ましい。

[0044] さらに、一般式(1)において、E 7 5～E 7 9のいずれか1つ及びE 8 4～E 8 8のいずれか1つが $-N=$ を表すことが好ましい。

[0045] また、一般式(1)において、E 7 1～E 7 4及びE 8 0～E 8 3が、各々 $-C(R_3)-$ で表されることが好ましい態様として挙げられる。

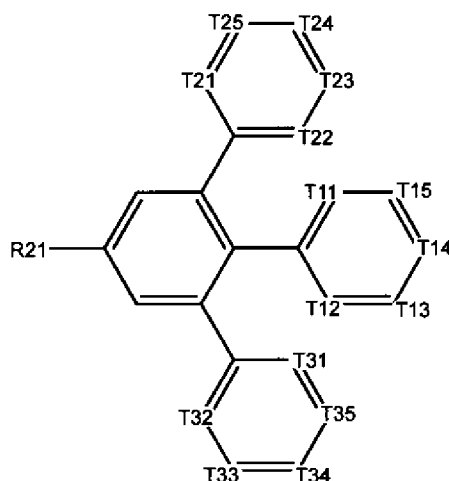
[0046] さらに、一般式(1)で表される化合物において、E 5 3が $-C(R_3)-$ で表され、且つ、 R_3 が連結部位を表すことが好ましく、さらに、E 6 1も同時に $-C(R_3)-$ で表され、且つ、 R_3 が連結部位を表すことが好ましい。

[0047] さらに、E 7 5及びE 8 4が $-N=$ で表されることが好ましく、E 7 1～E 7 4及びE 8 0～E 8 3が、各々 $-C(R_3)-$ で表されることが好ましい。

[0048] また窒素含有層1 aを構成する化合物の他の例として、下記一般式(2)で表される化合物が用いられる。

[化4]

一般式(2)



[0049] 上記一般式(2)の式中、 R_{21} は置換基を表す。また T_{11} 、 T_{12} 、 $T_{21} \sim T_{25}$ 、 $T_{31} \sim T_{35}$ は、各々 $-C(R_{22})=$ または $-N=$ を表し、 $T_{13} \sim T_{15}$ は、各々 $-C(R_{22})=$ を表す。さらに R_{22} は、水素原子(H)または置換基を表す。 T_{11} および T_{12} のうちの少なくとも1つは窒素原子($-N=$)であり、 $T_{21} \sim T_{25}$ のうちの少なくとも1つは窒素原子($-N=$)であり、 $T_{31} \sim T_{35}$ のうちの少なくとも1つは窒素原子($-N=$)である。

[0050] また一般式(2)のうち、 R_{21} 、および R_{22} が示す置換基の例としては、一般式(1)の R_3 と同様のものが挙げられる。これらの置換基の一部は、上記の置換基によってさらに置換されていてもよい。

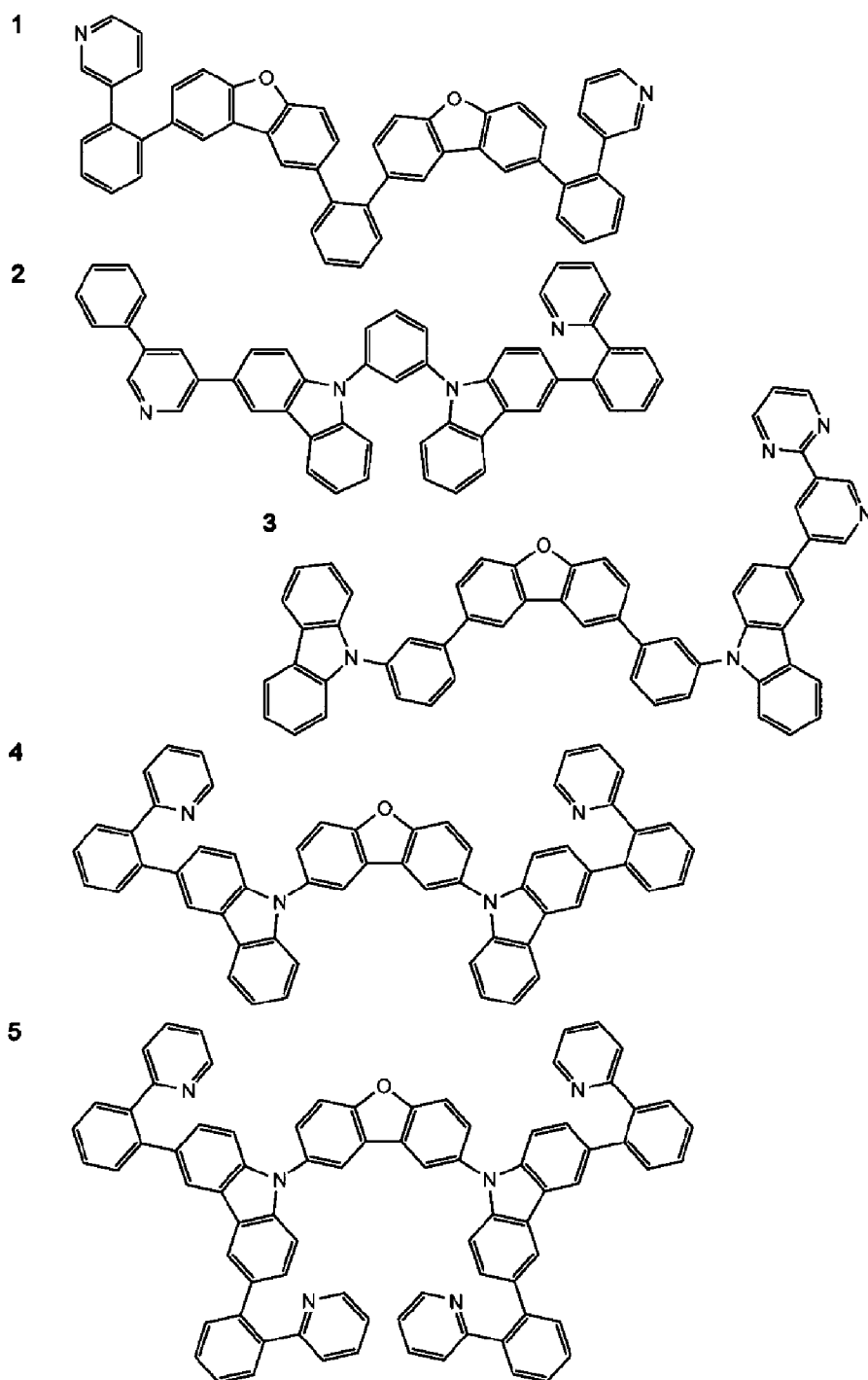
[0051] 以上のような窒素含有層1aが基板11上に成膜されたものである場合、その成膜方法としては、塗布法、インクジェット法、コーティング法、ディップ法などのウェットプロセスを用いる方法や、蒸着法(抵抗加熱、EB法など)、スパッタ法、CVD法などのドライプロセスを用いる方法などが挙げられる。なかでも蒸着法が好ましく適用される。

[0052] [化合物の具体例]

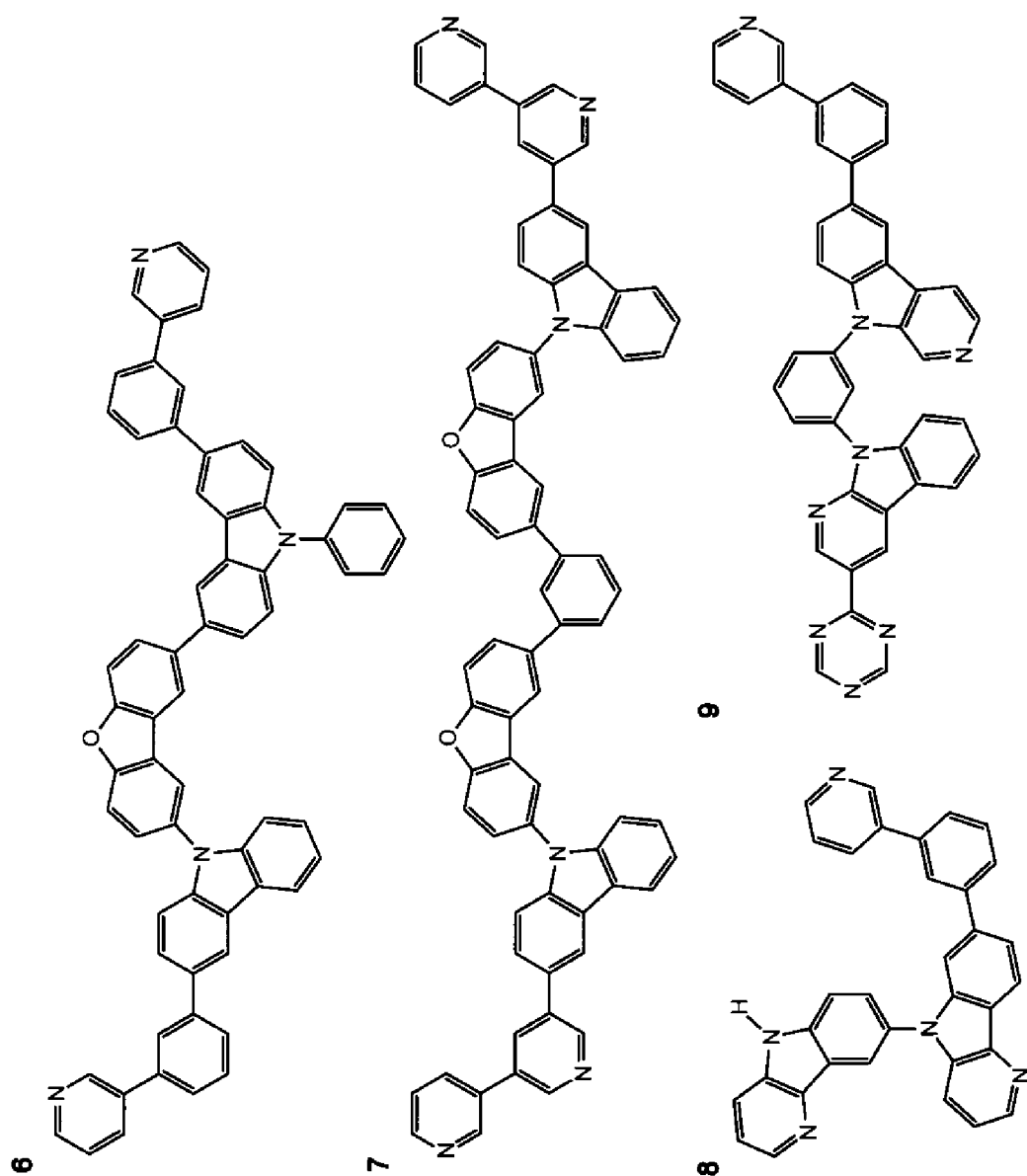
以下に、窒素含有層1aを構成する化合物の具体例(1~134)を示すが、これらに限定されない。尚、ここでは、上記一般式(1)および一般式

(2) には含まれない化合物も例示している。また本発明において透明導電層1bに隣接して設けられる窒素含有層1aは、以下に例示される化合物(1~134)のうちから、上述した式(1)または式(2)に当てはまる化合物が選択して用いられる。

[0053] [化5]

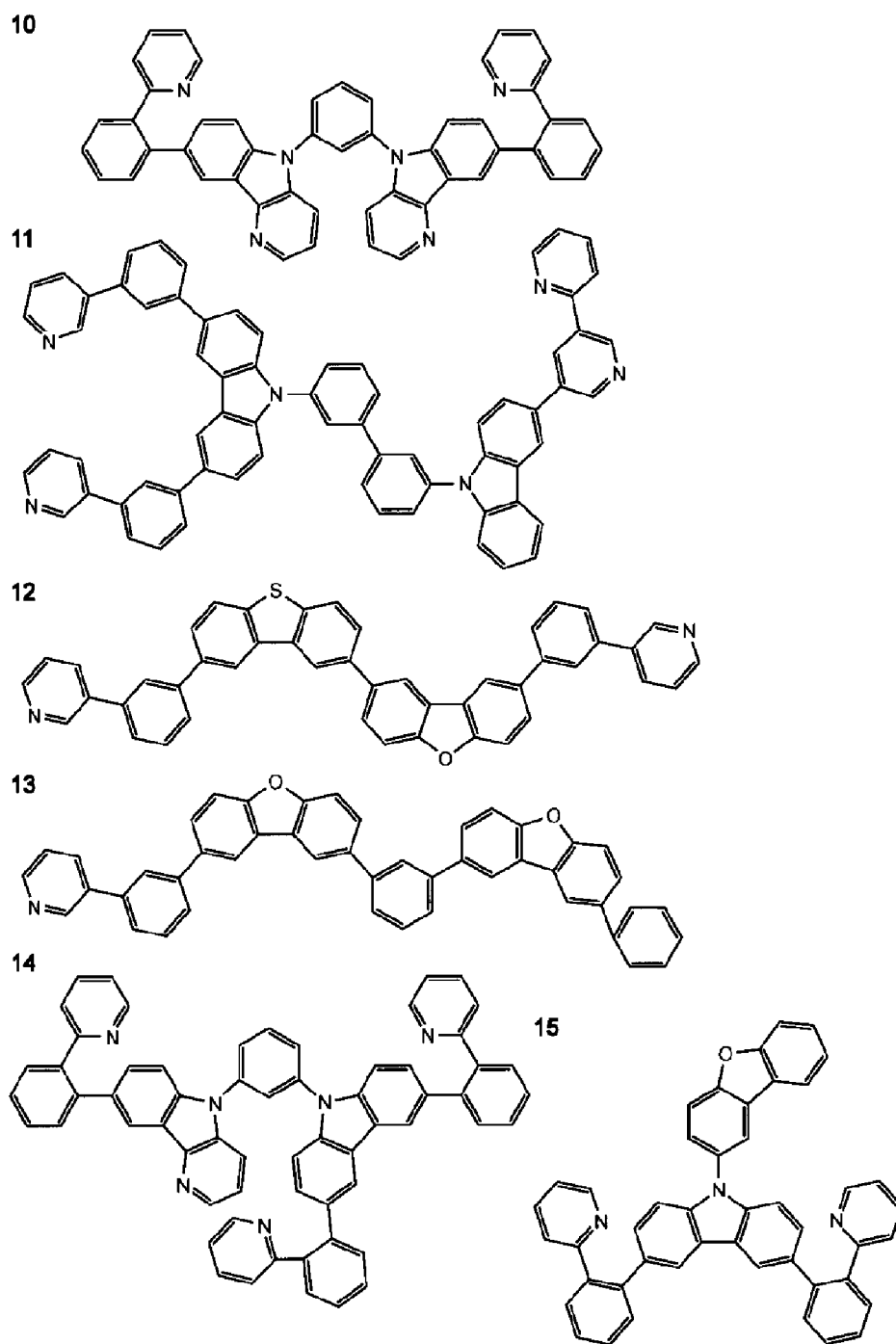


[0054] [化6]



[0055]

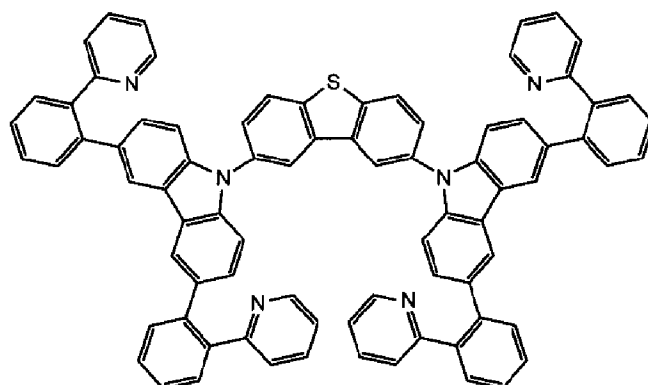
[化7]



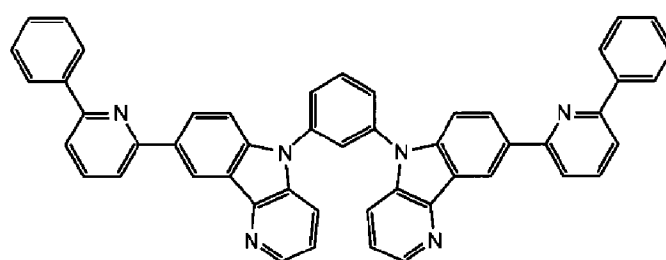
[0056]

[化8]

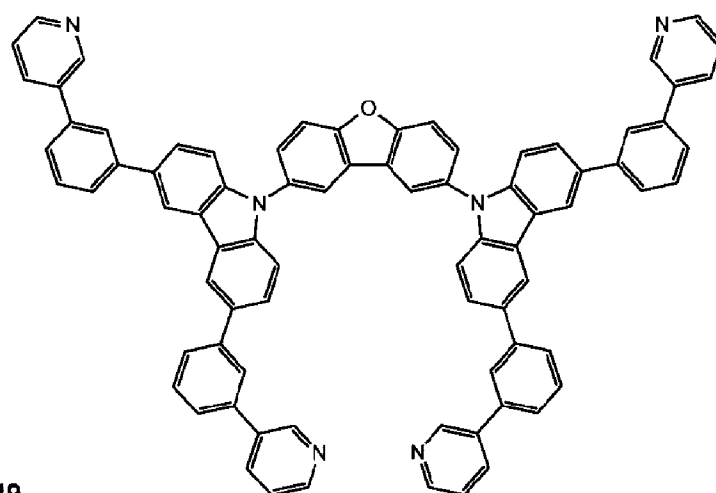
16



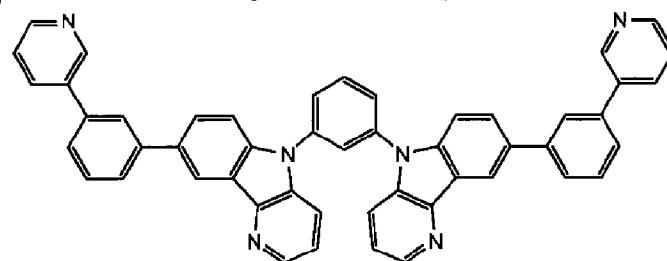
17



18



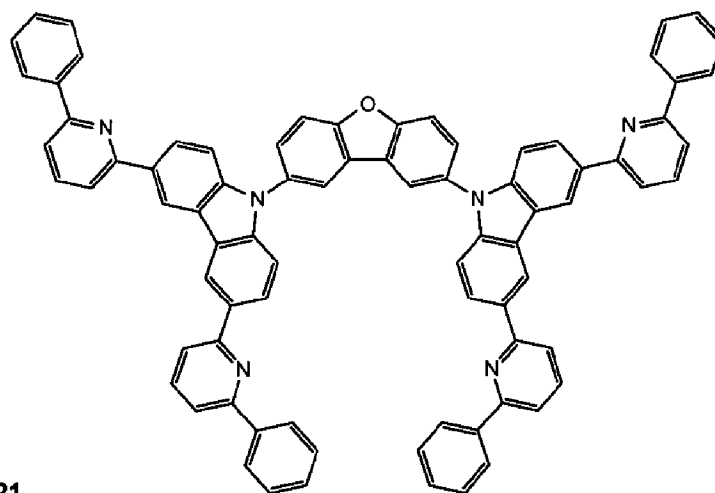
19



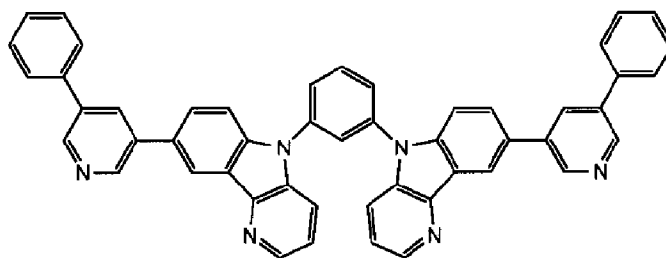
[0057]

[化9]

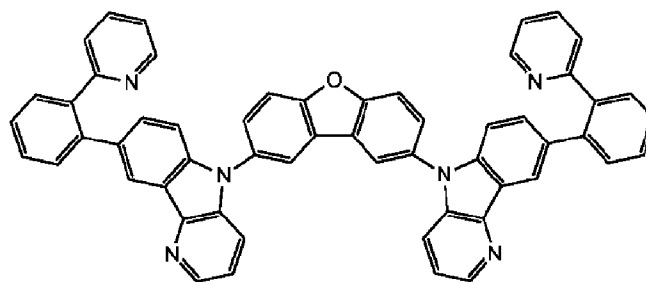
20



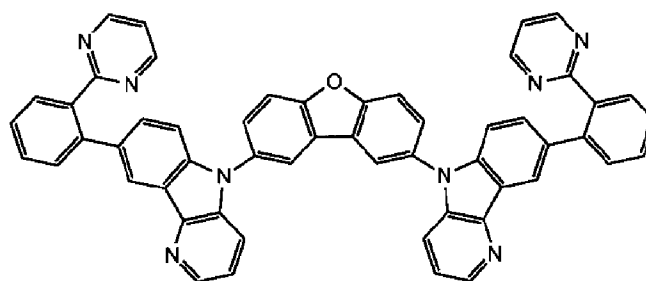
21



22

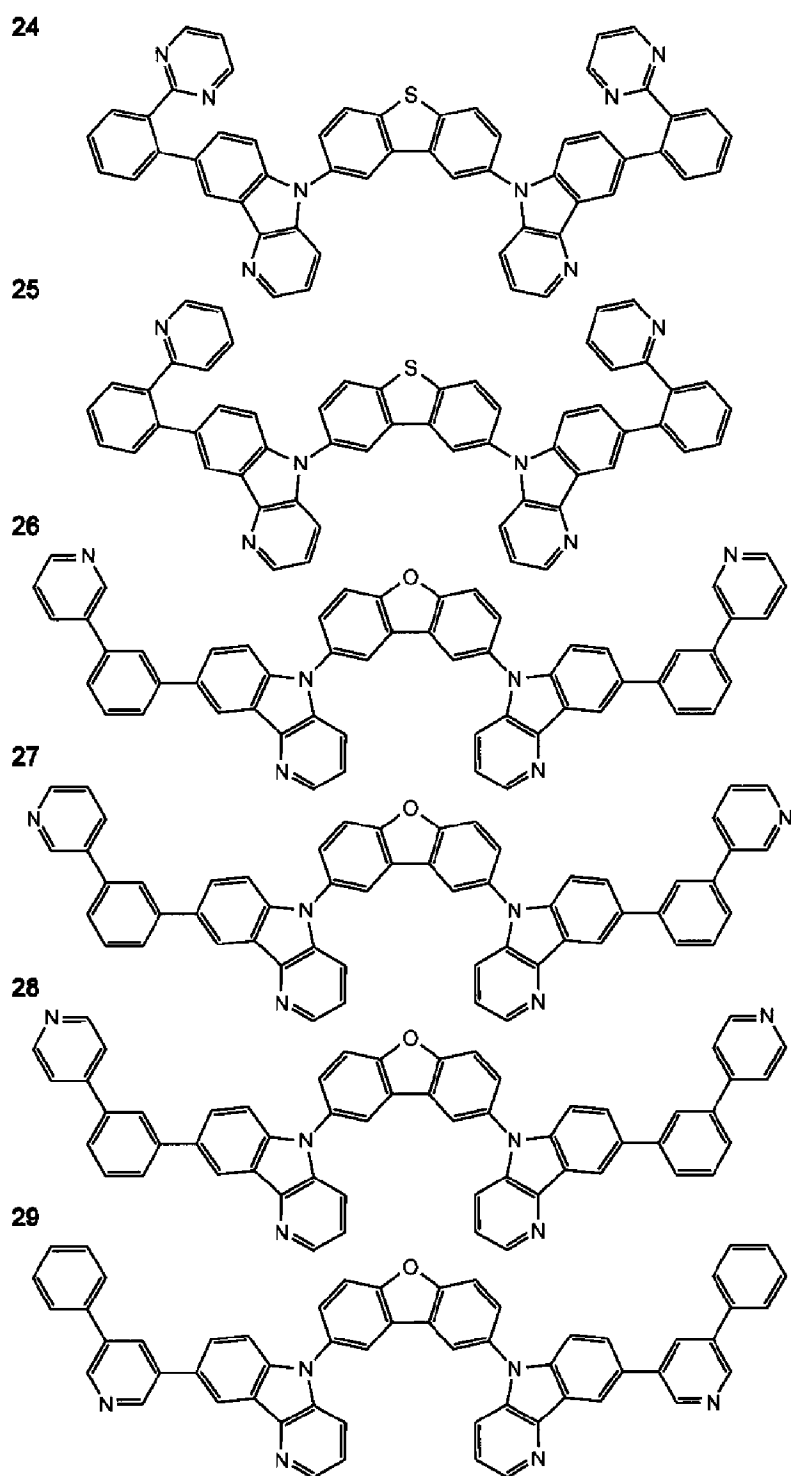


23



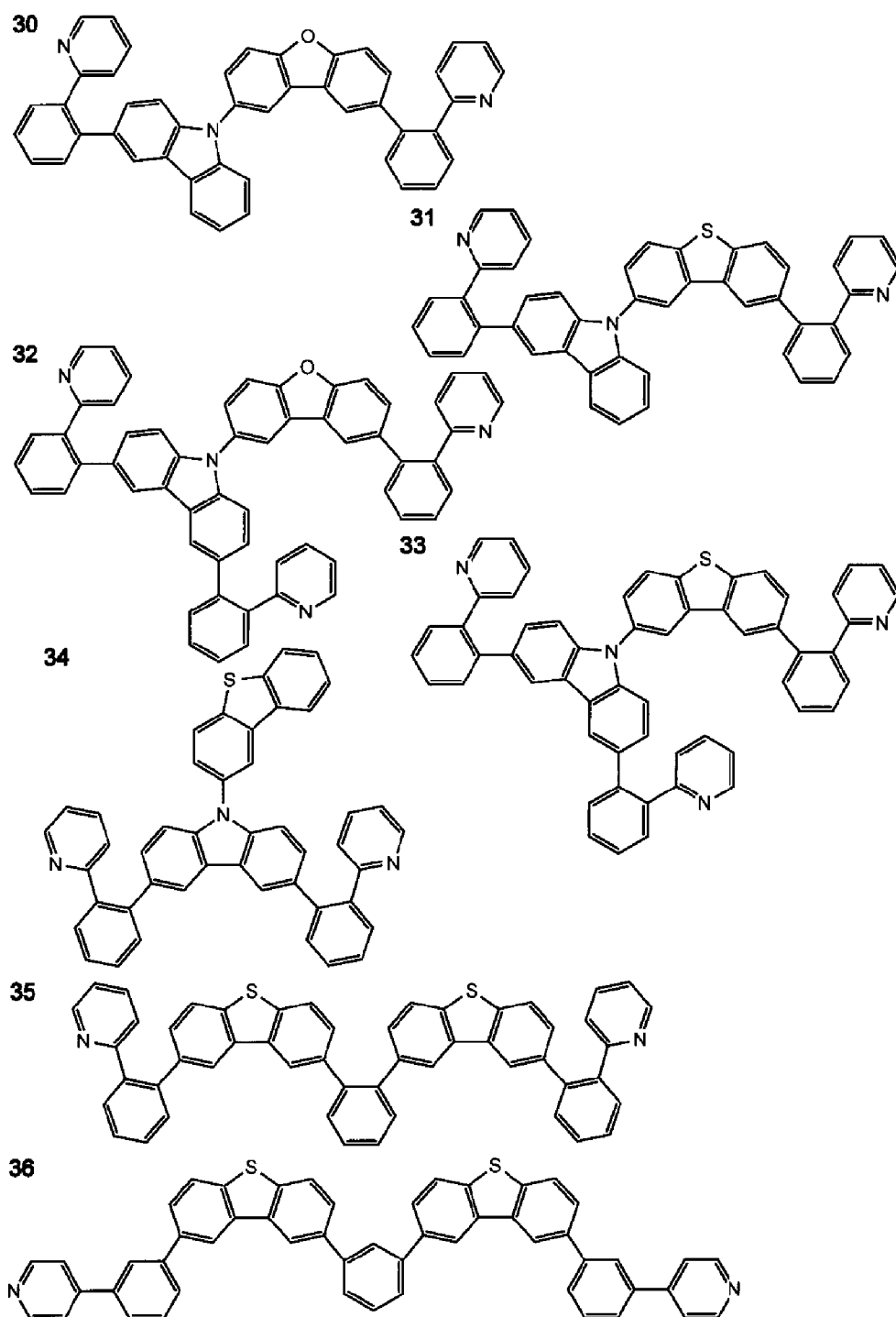
[0058]

[化10]



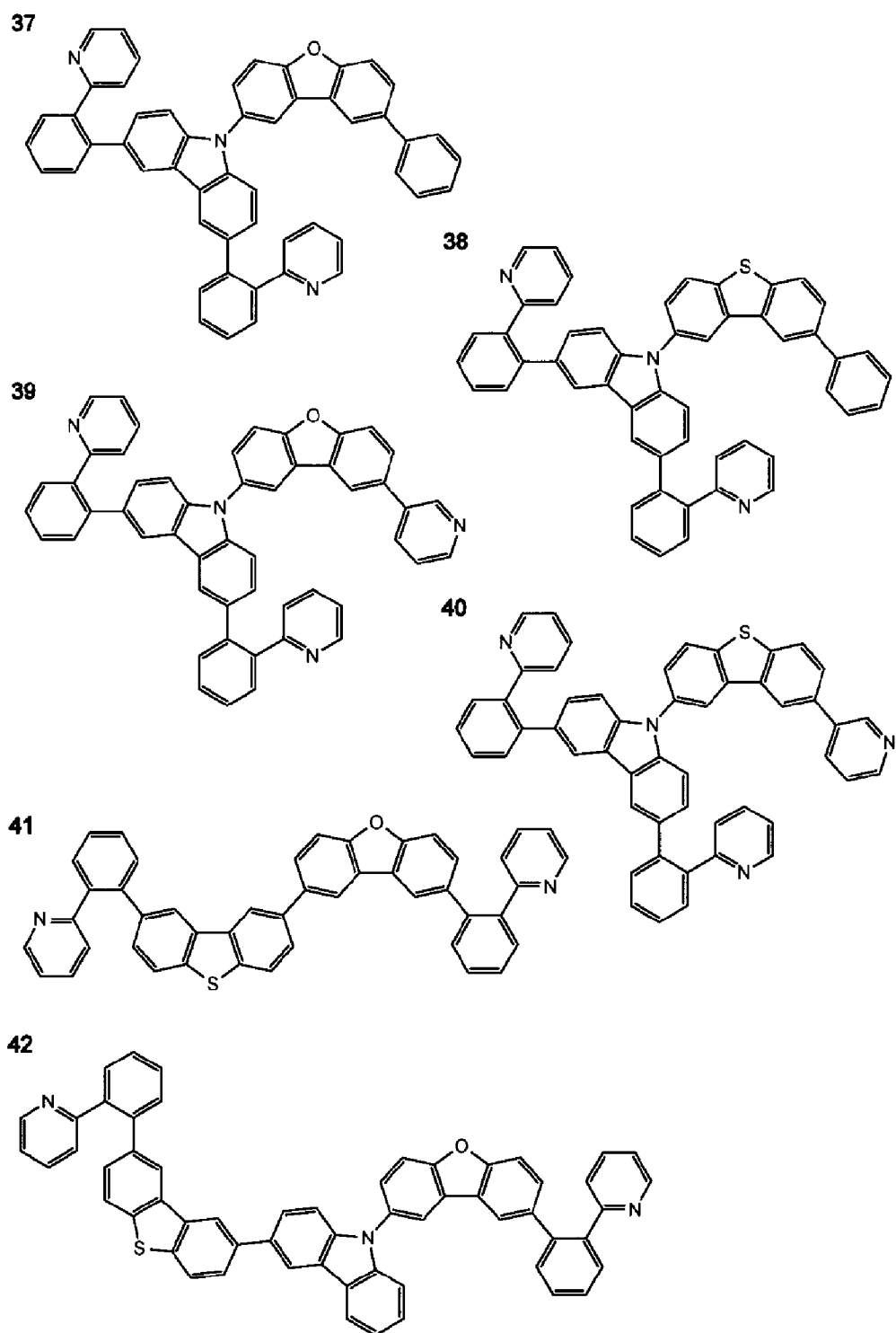
[0059]

[化11]



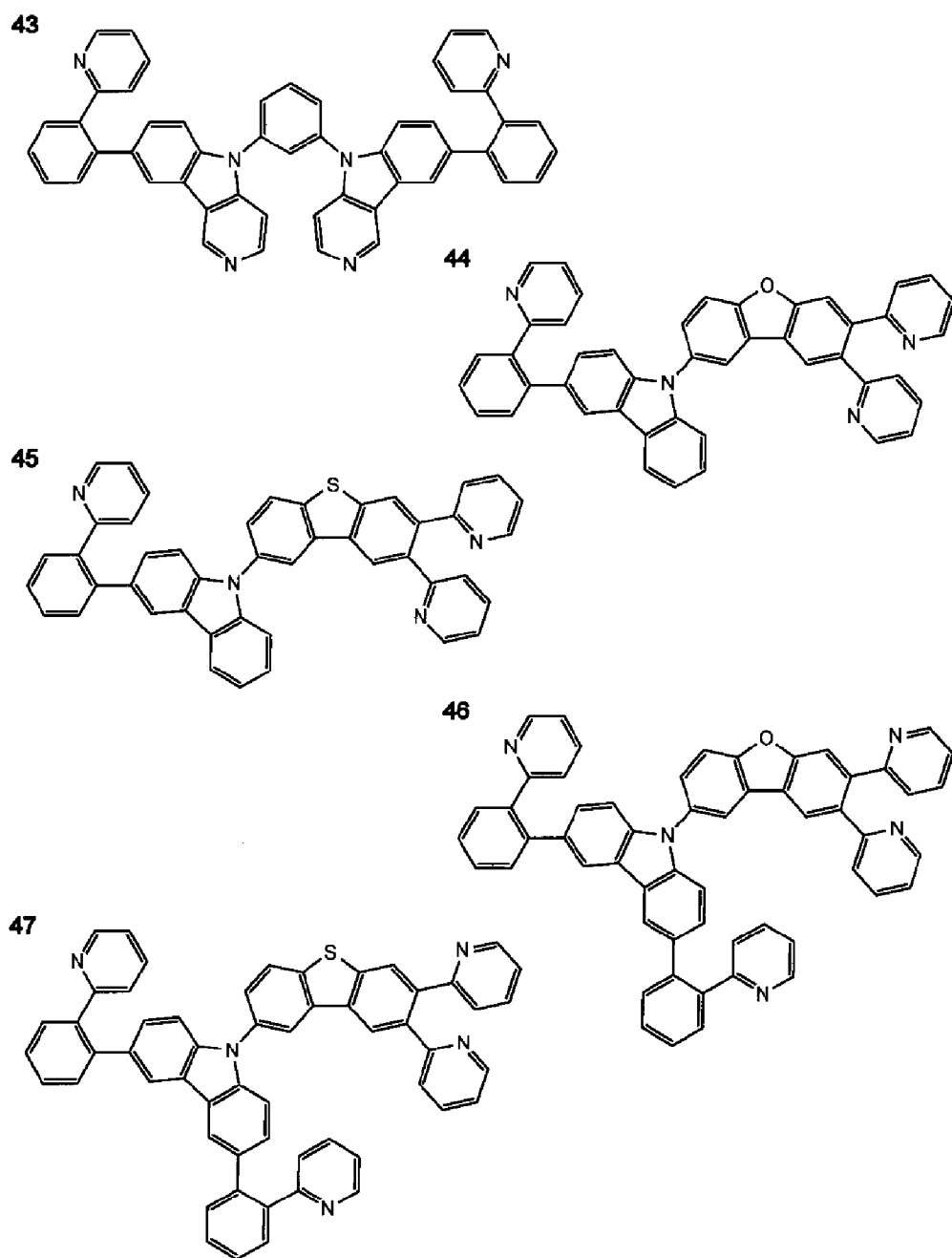
[0060]

[化12]



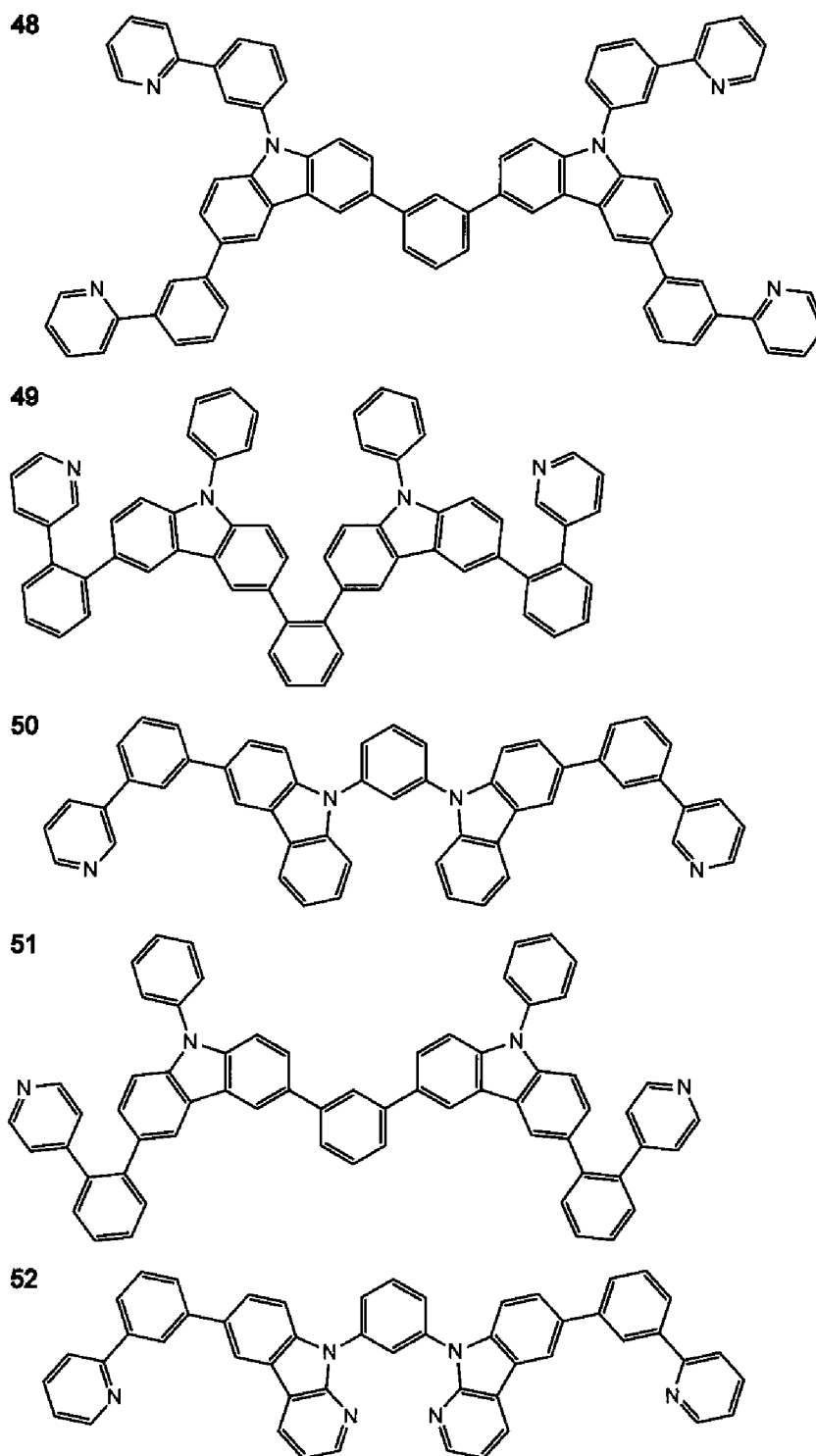
[0061]

[化13]



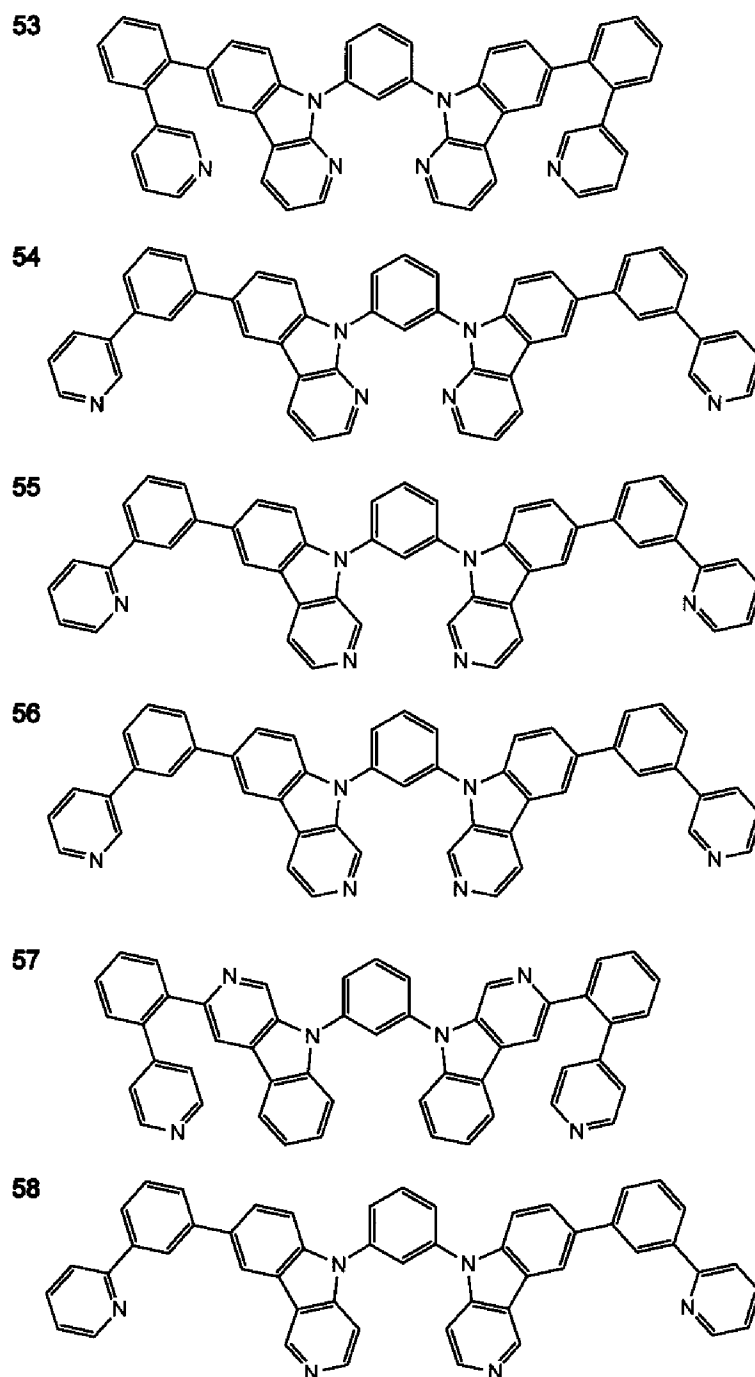
[0062]

[化14]



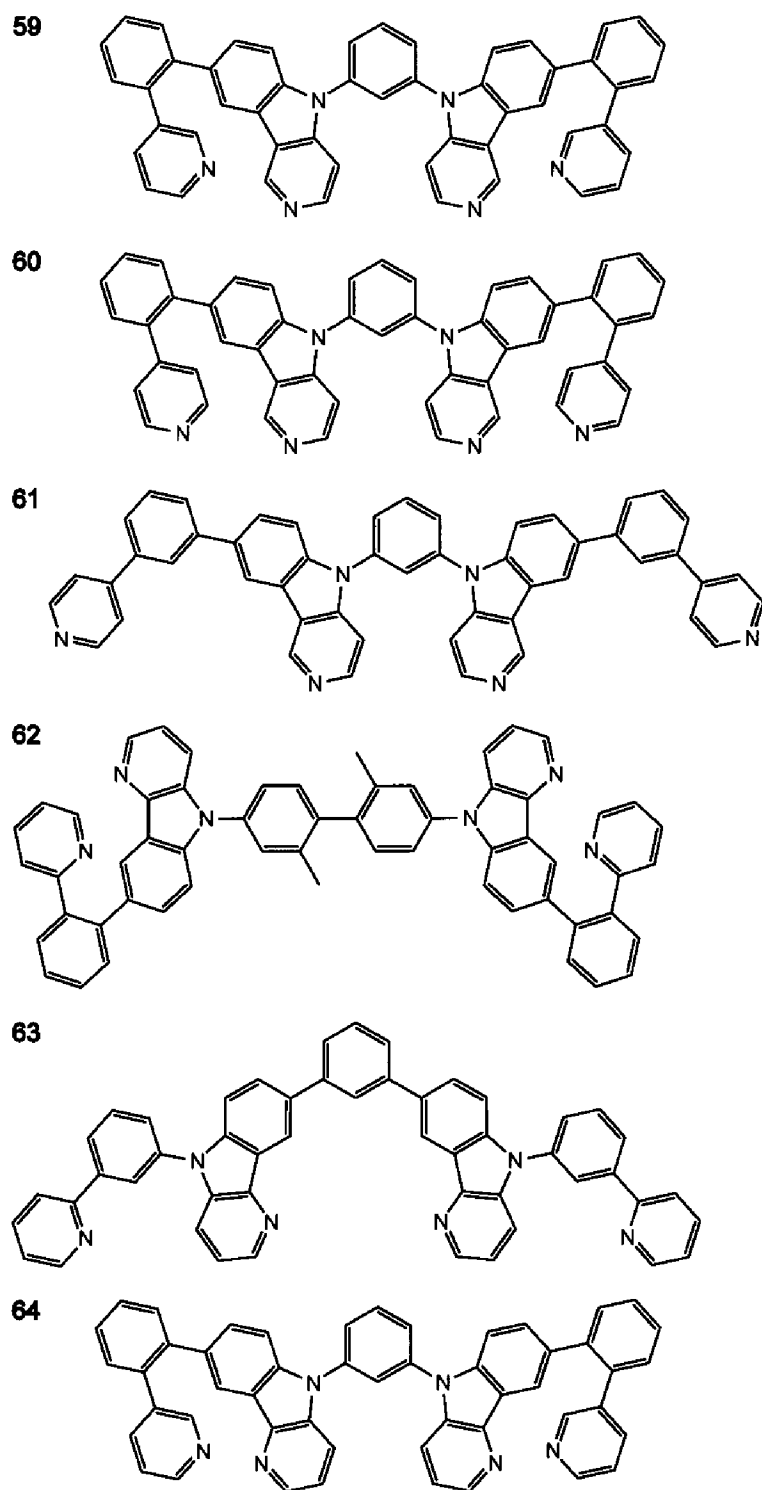
[0063]

[化15]



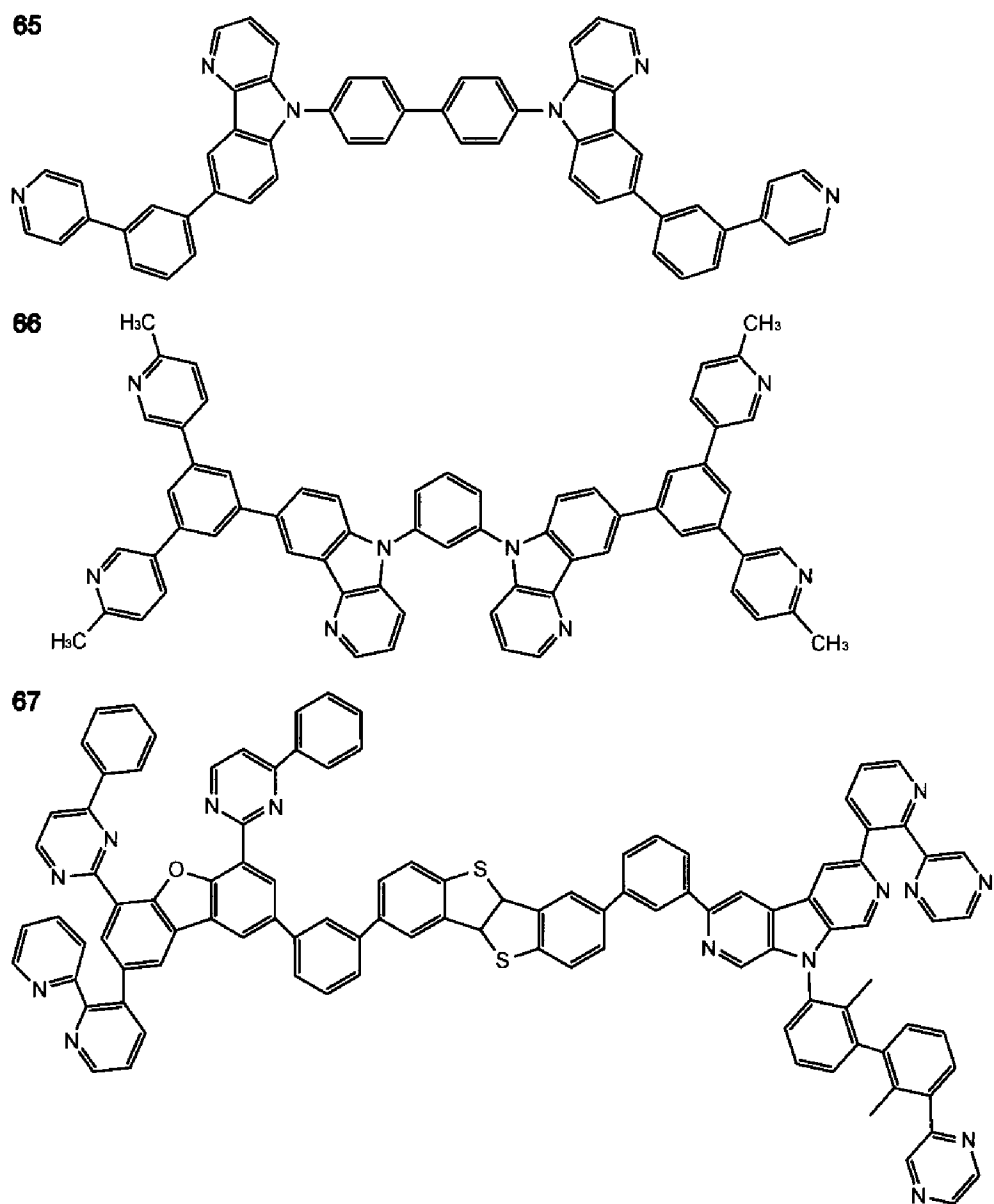
[0064]

[化16]



[0065]

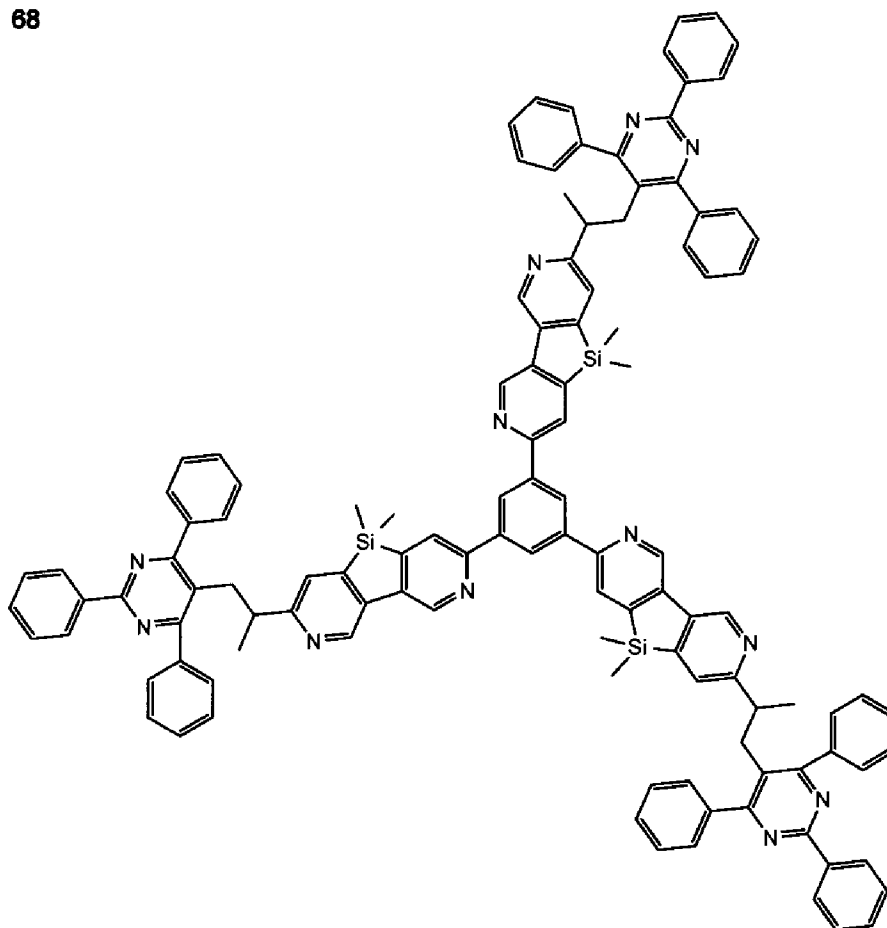
[化17]



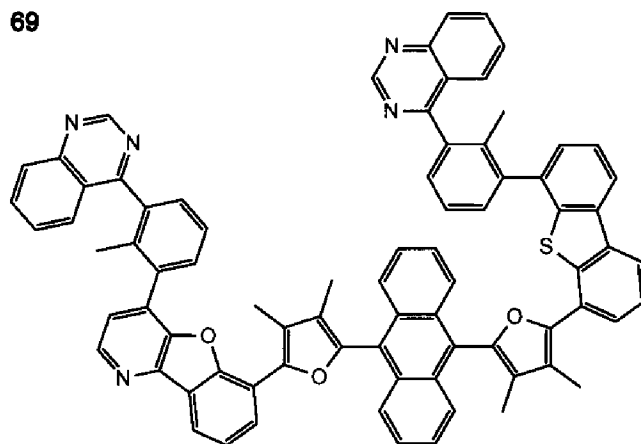
[0066]

[化18]

68

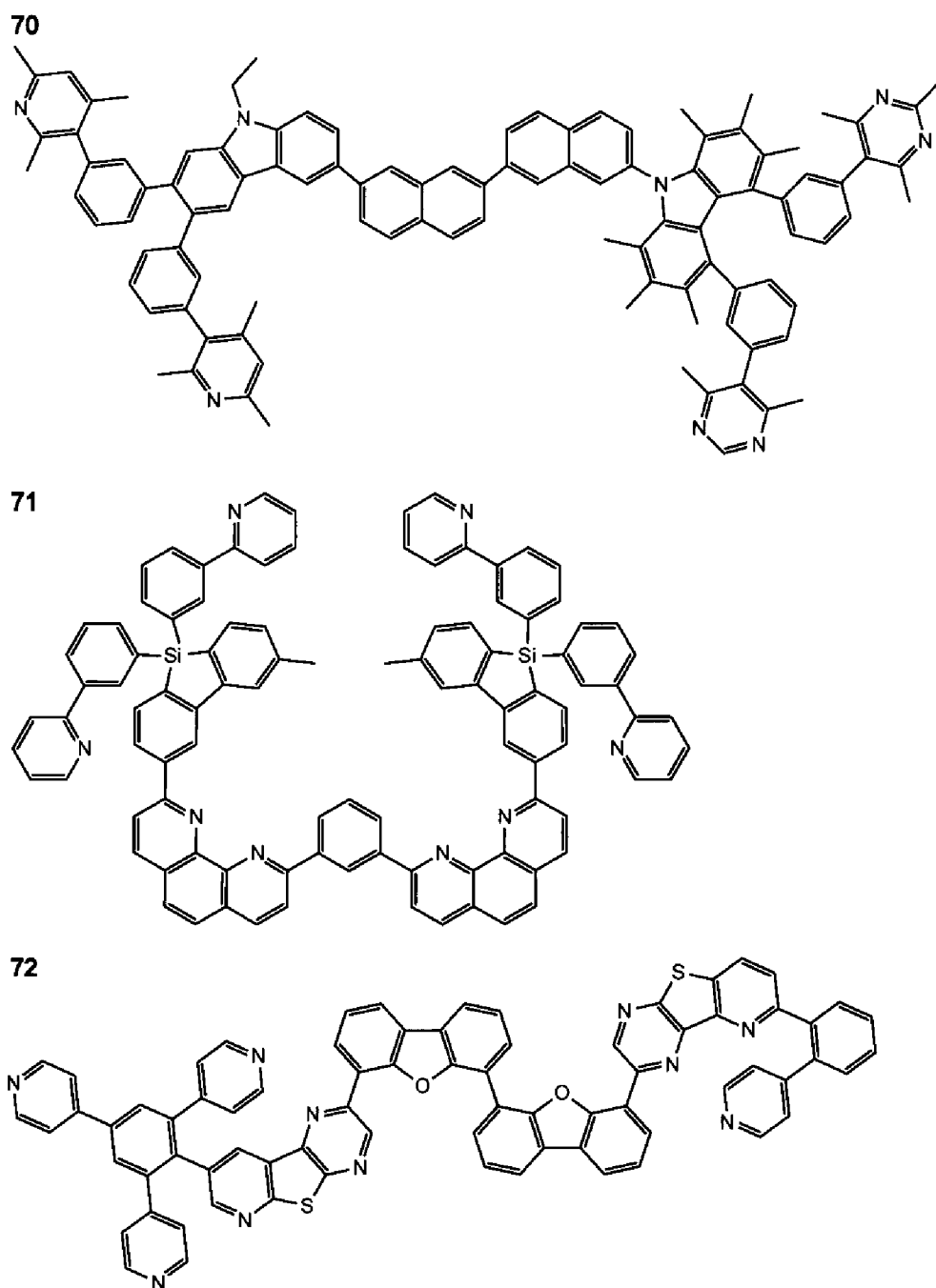


69



[0067]

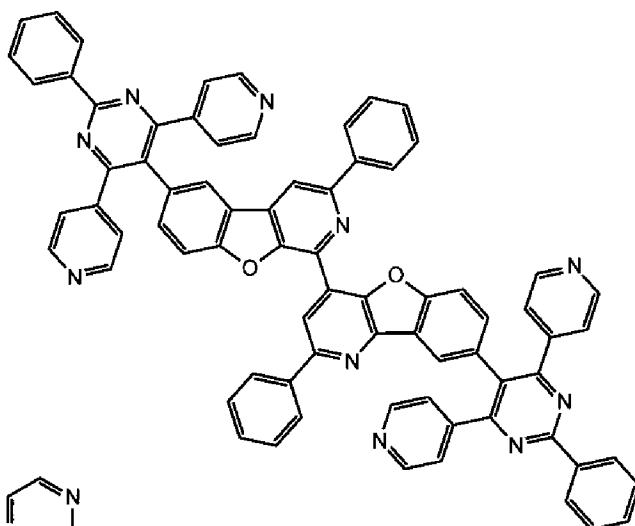
[化19]



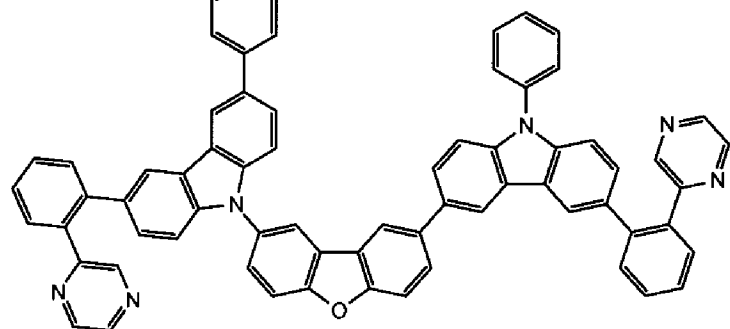
[0068]

[化20]

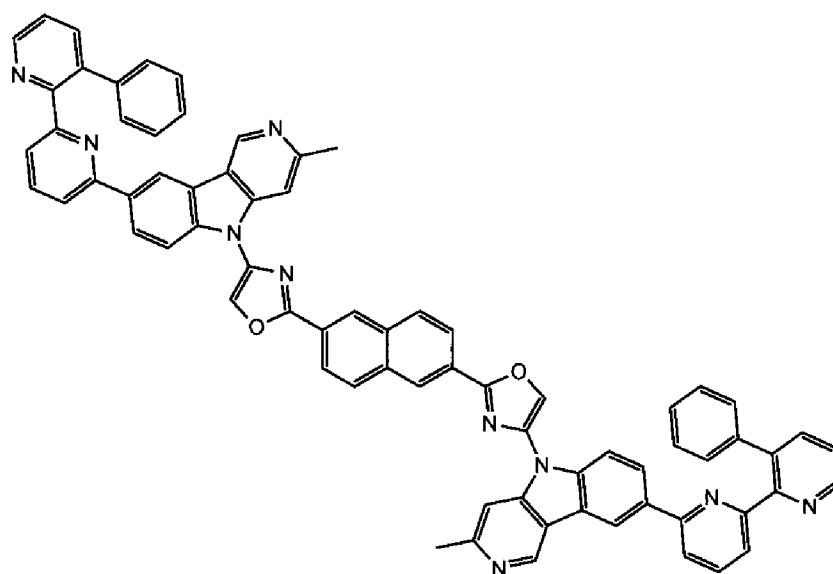
73



74



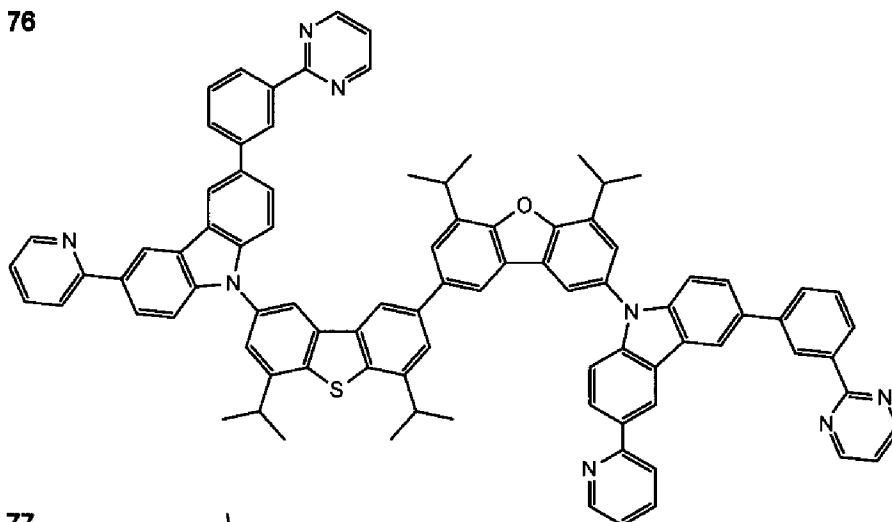
75



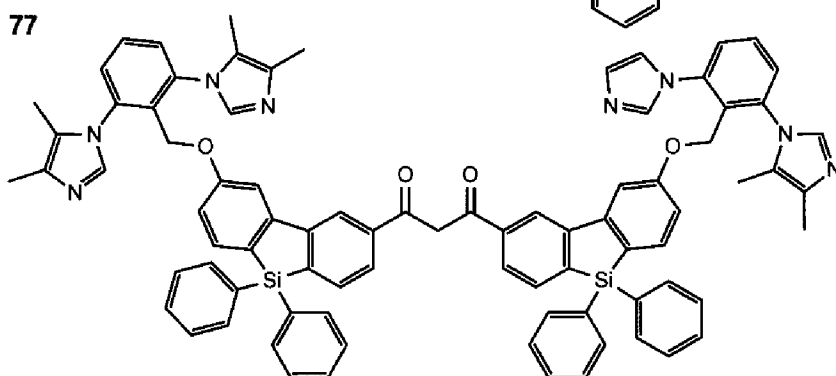
[0069]

[化21]

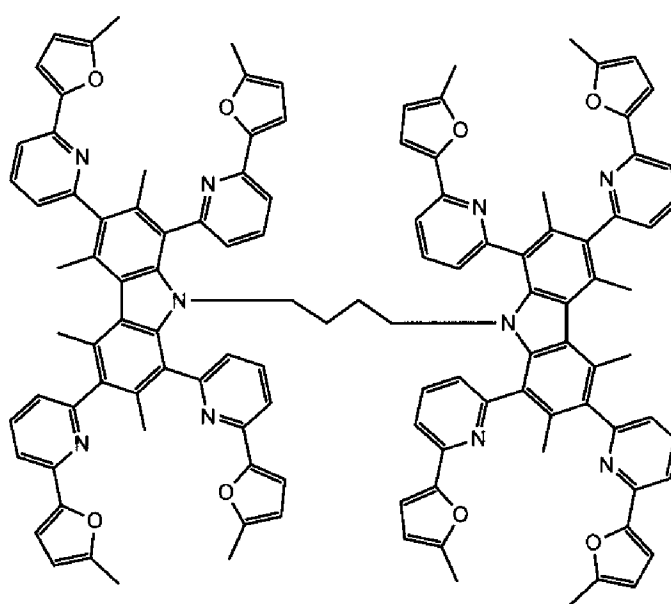
76



77

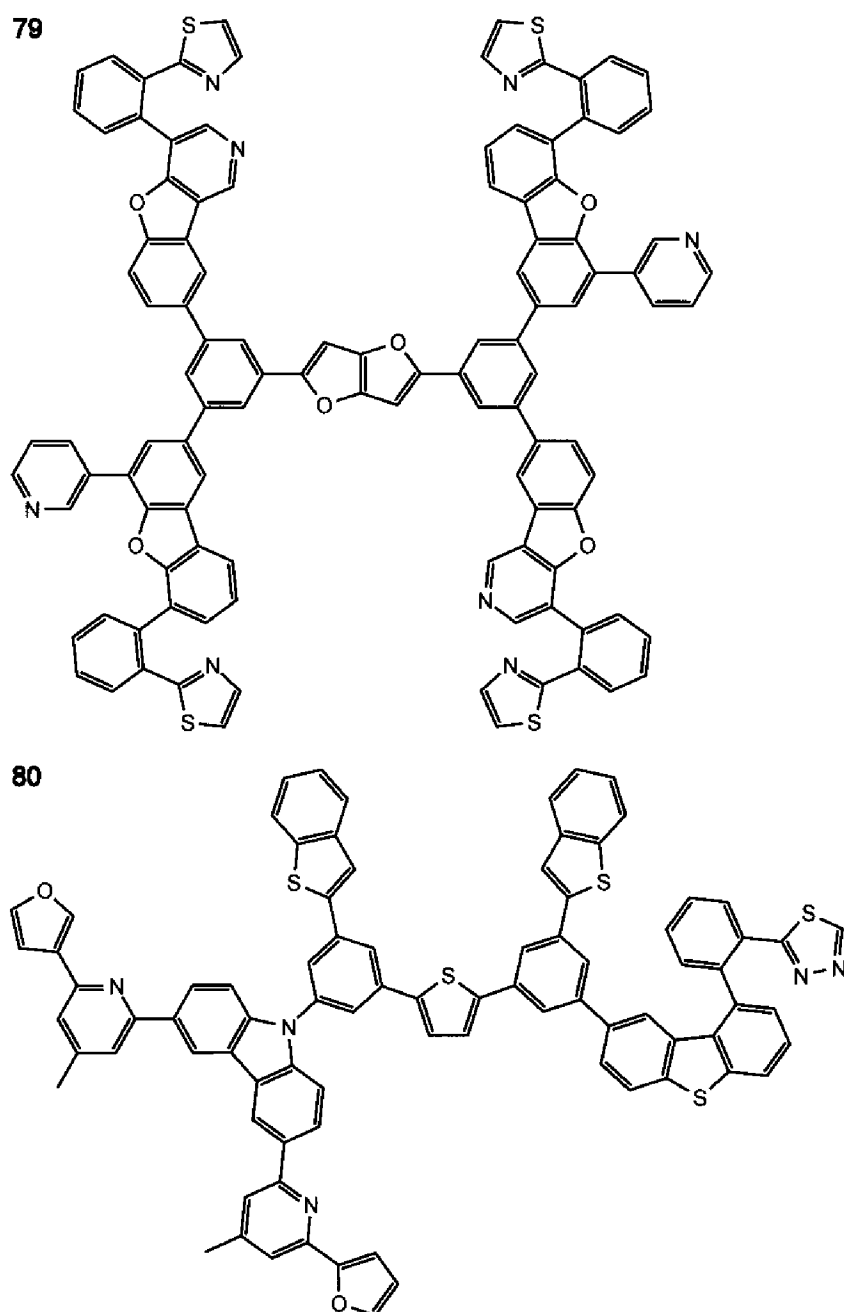


78



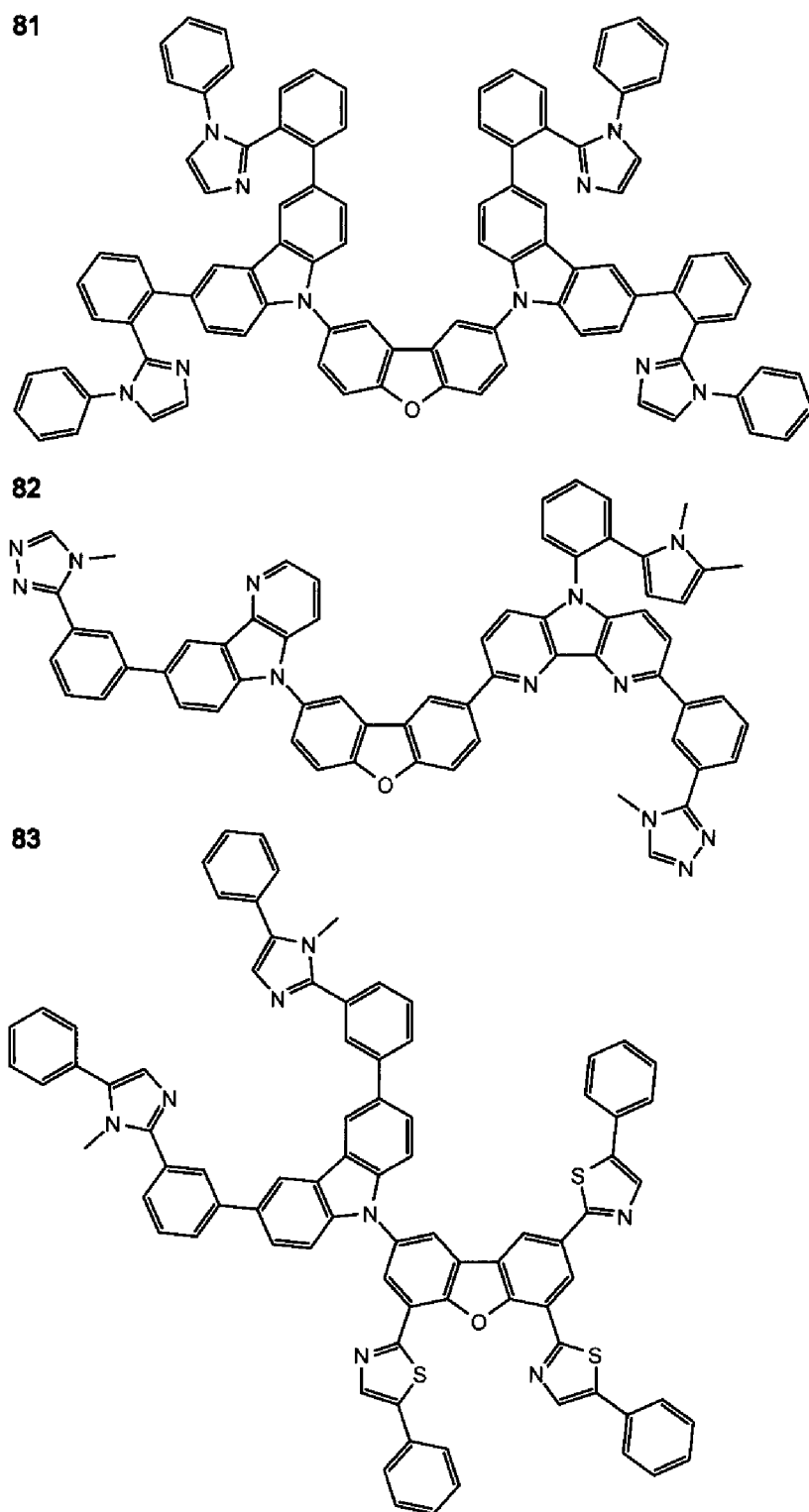
[0070]

[化22]



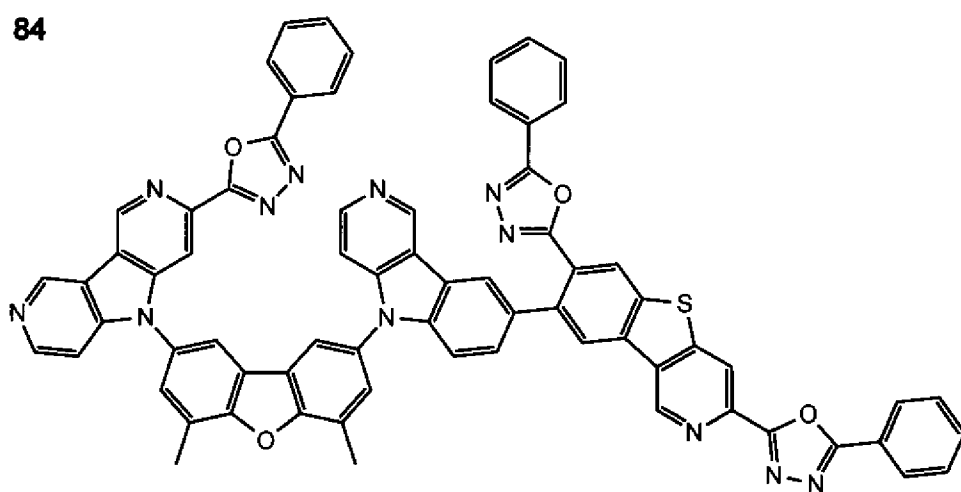
[0071]

[化23]



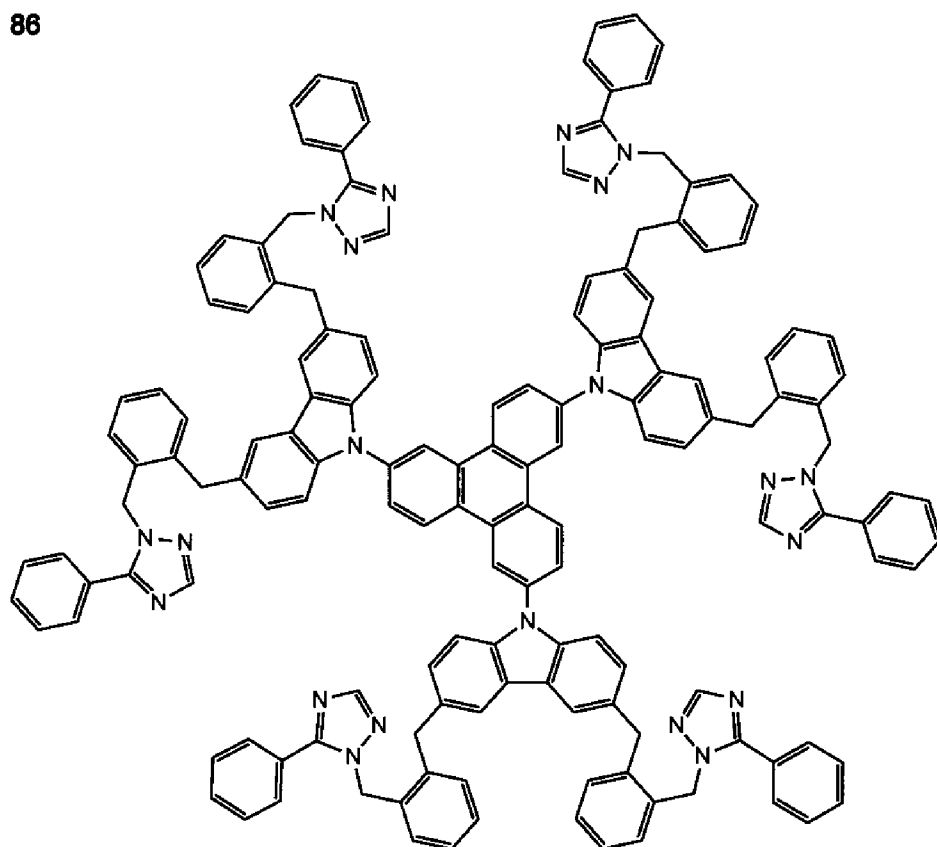
[0072]

[化24]

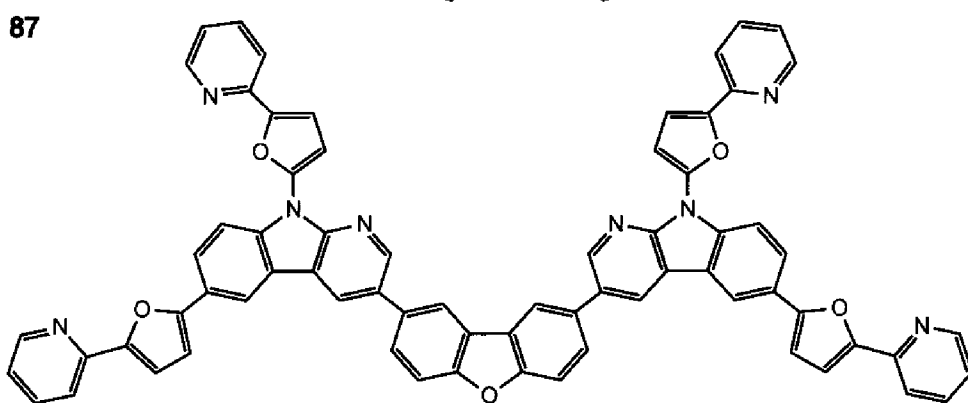


[化25]

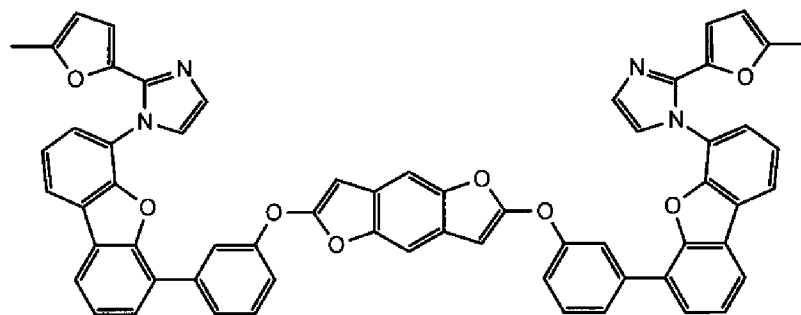
86



87

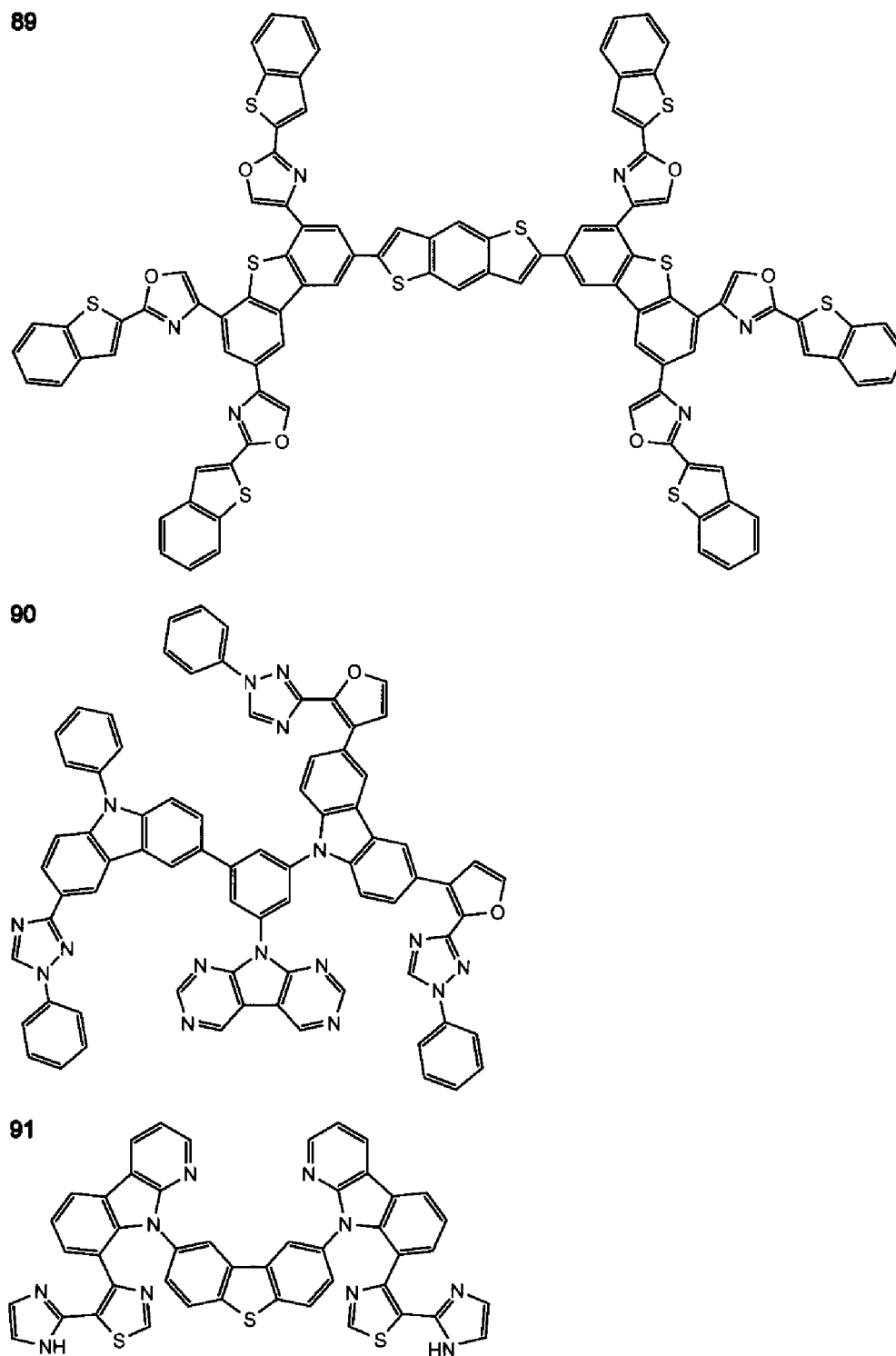


88



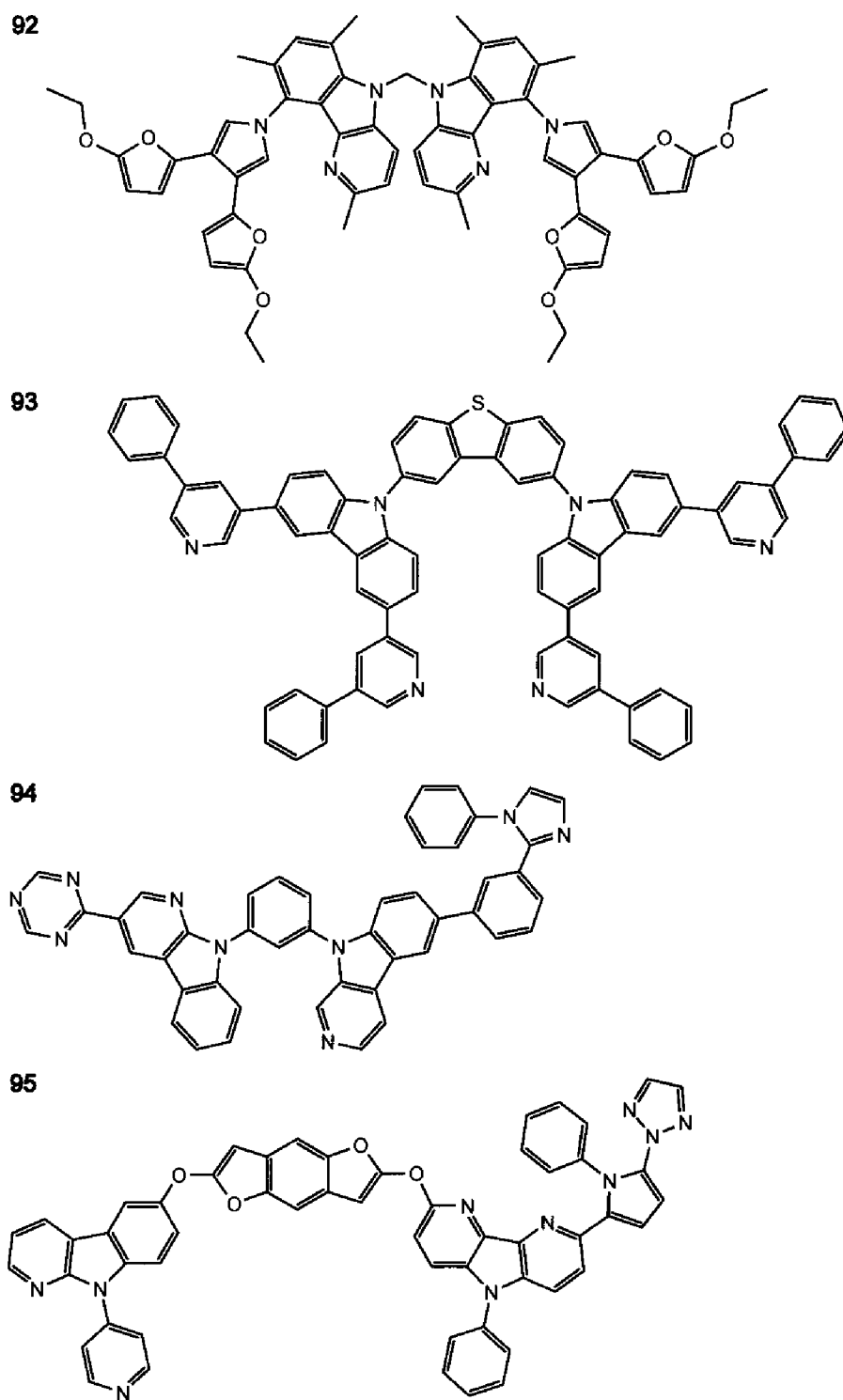
[0074]

[化26]



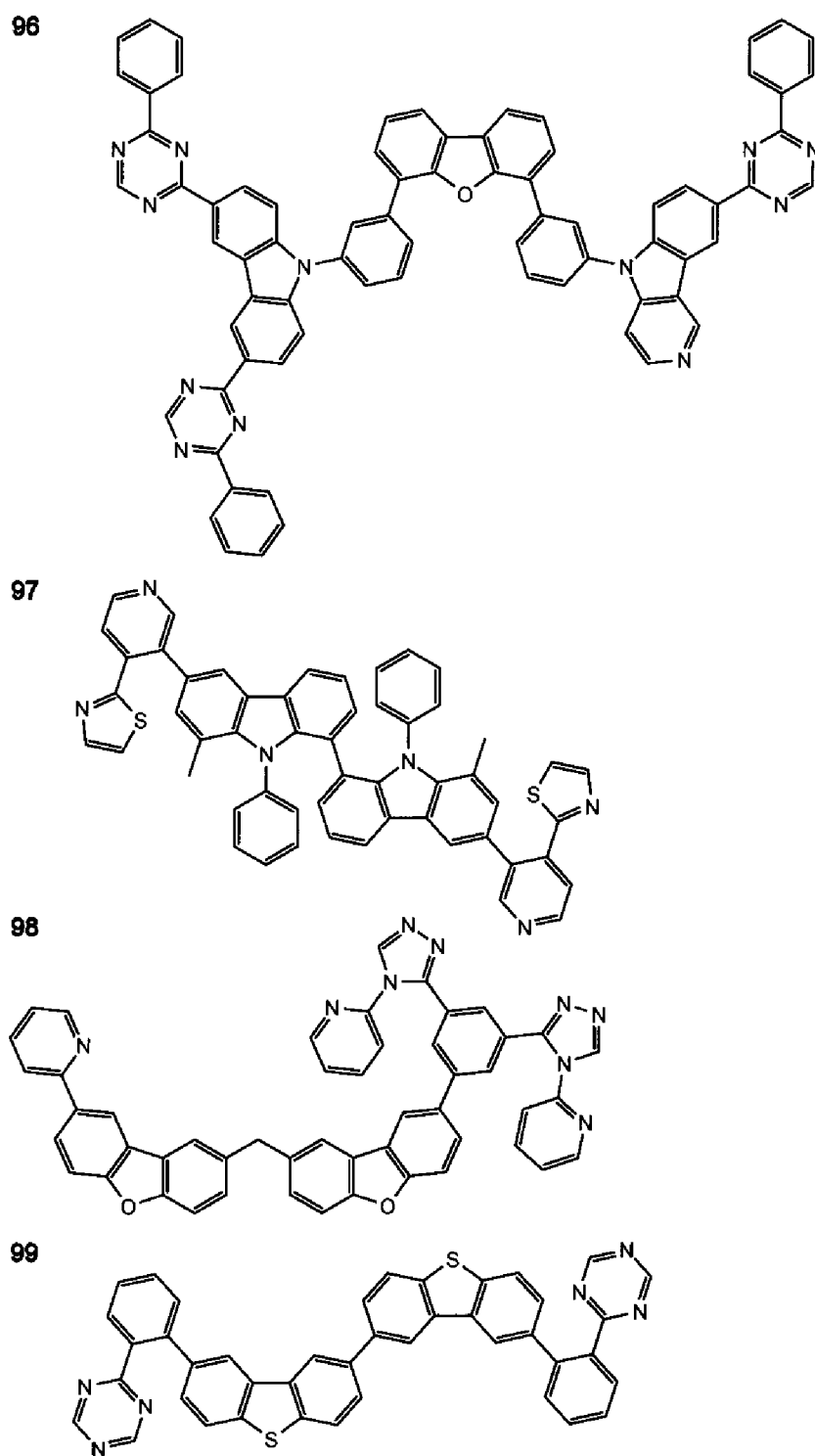
[0075]

[化27]



[0076]

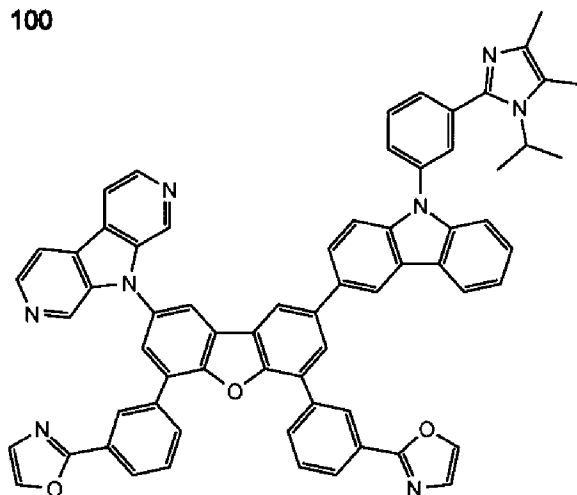
[化28]



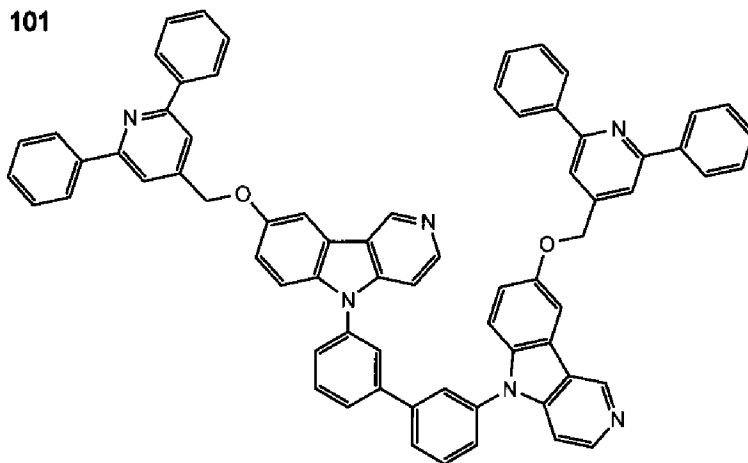
[0077]

[化29]

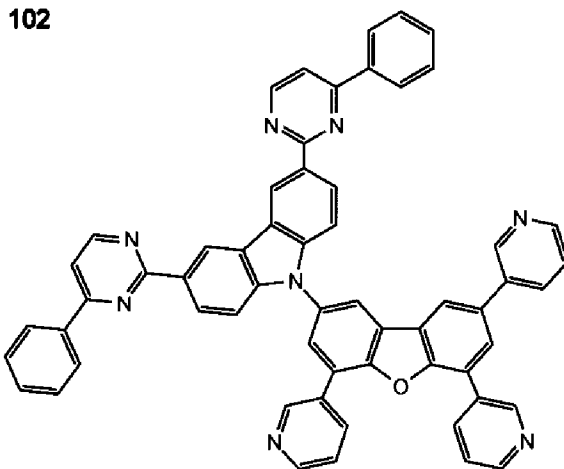
100



101



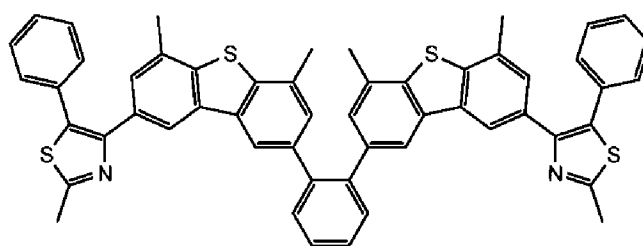
102



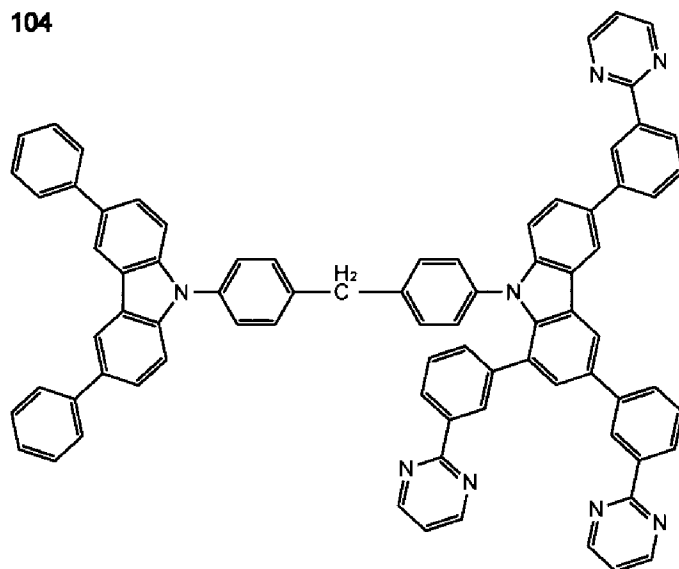
[0078]

[化30]

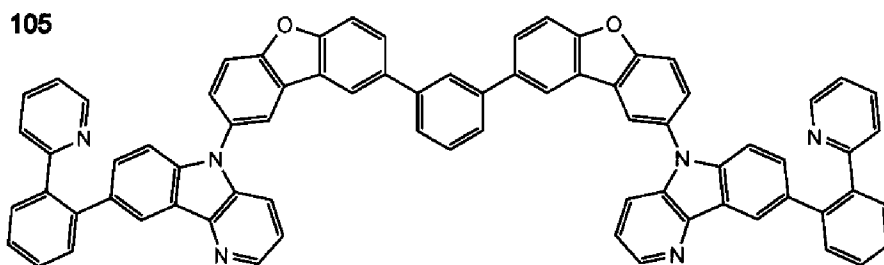
103



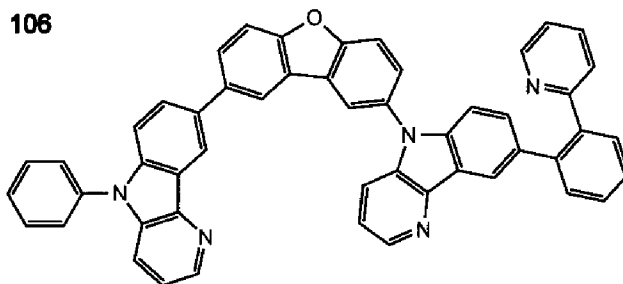
104



105

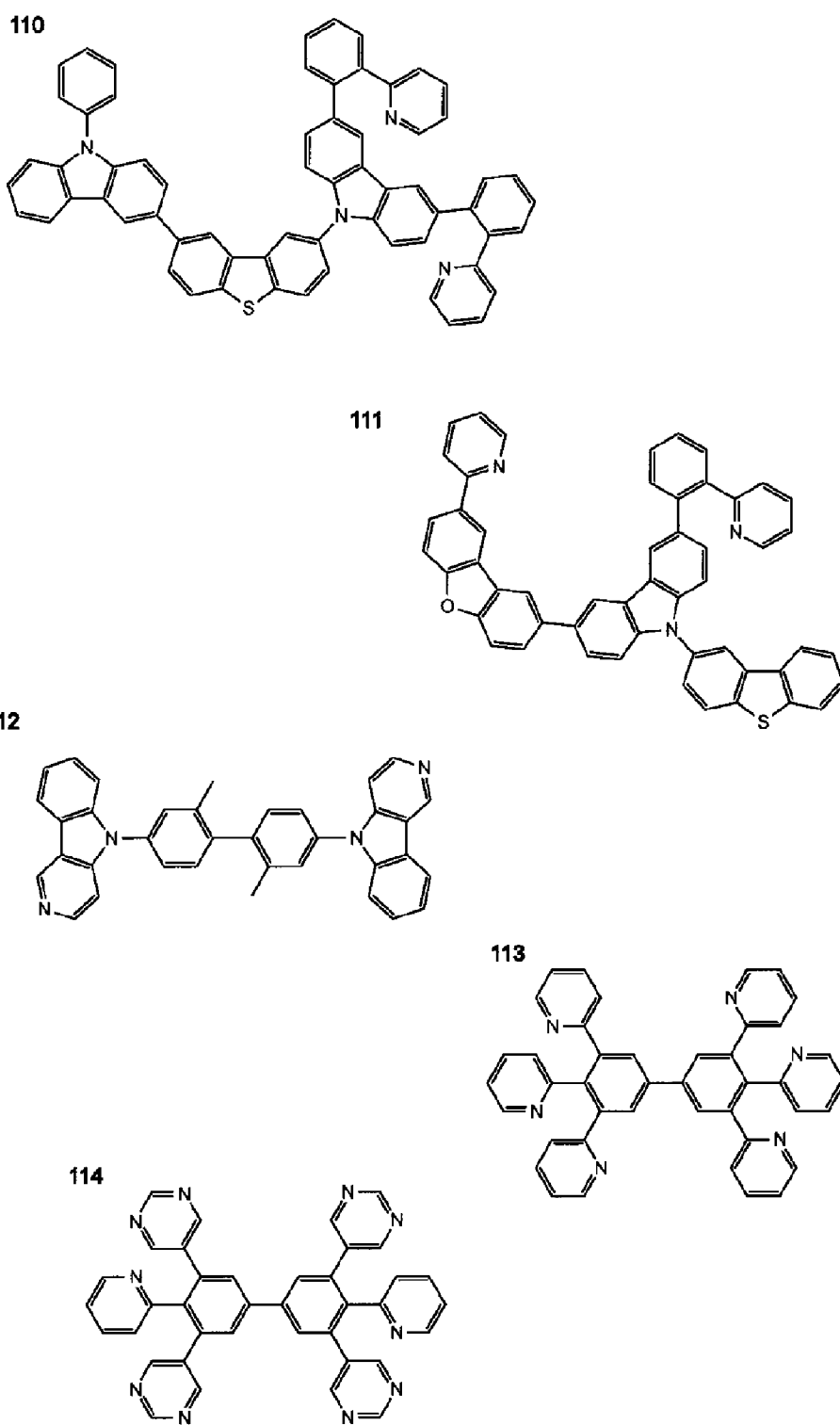


106



[0079]

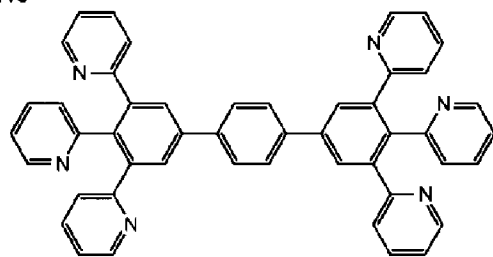
[化32]



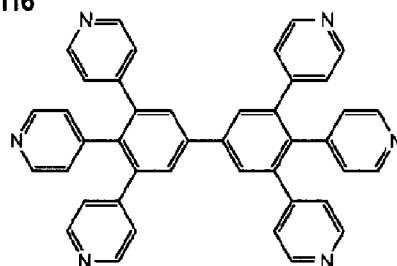
[0081]

[化33]

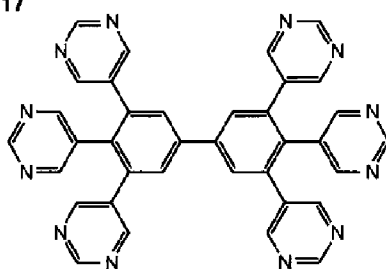
115



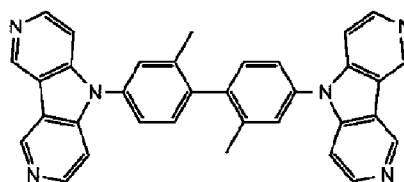
116



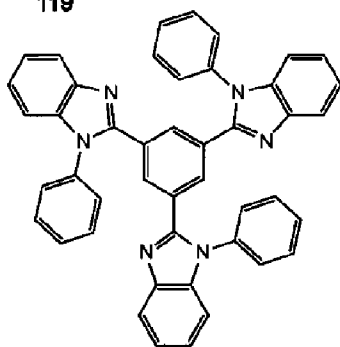
117



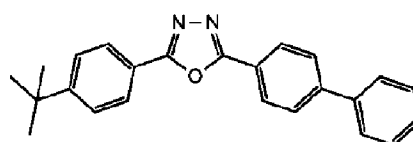
118



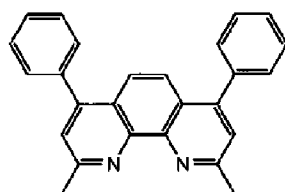
119



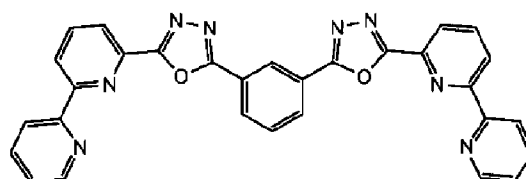
120



121

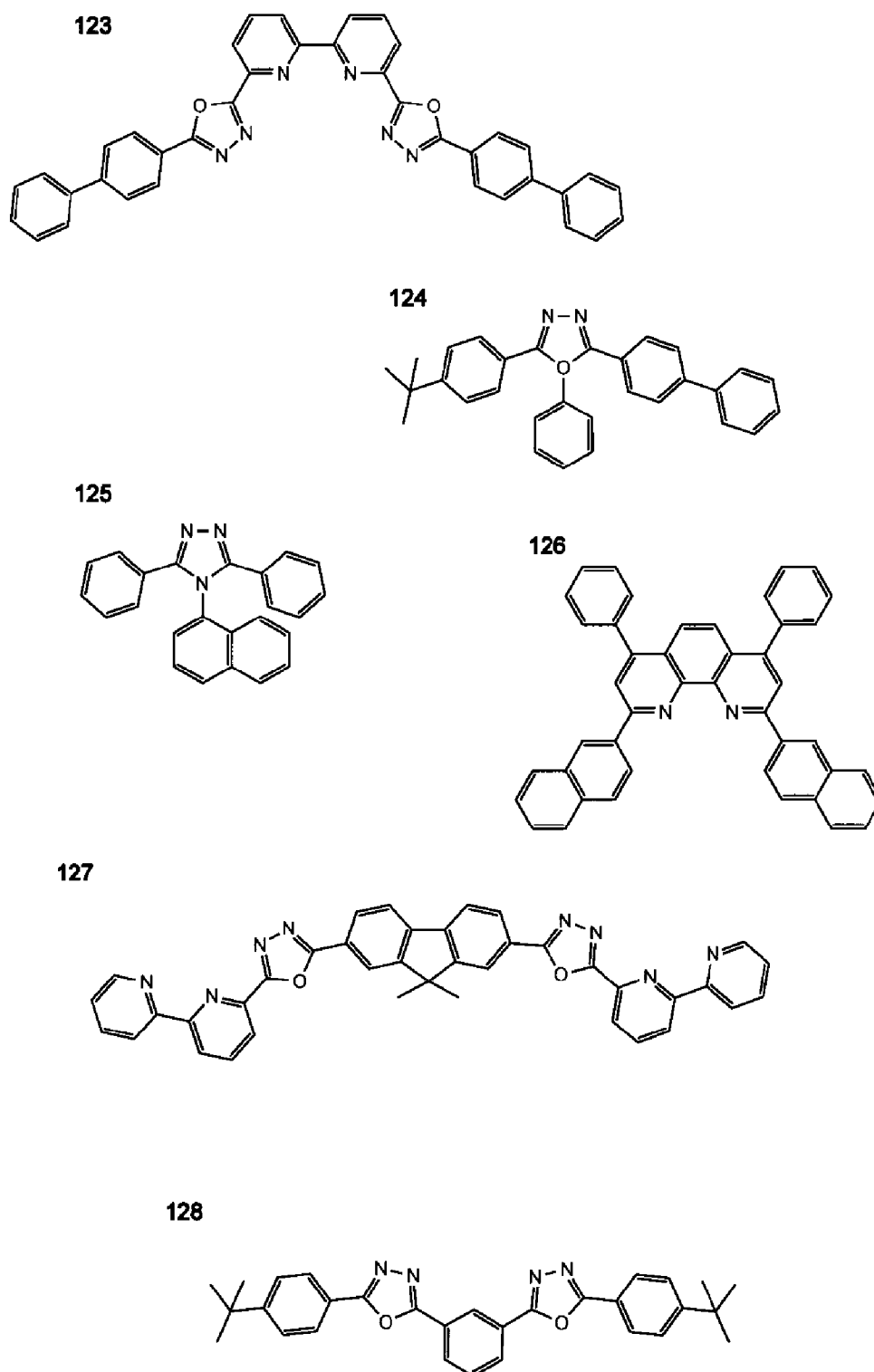


122



[0082]

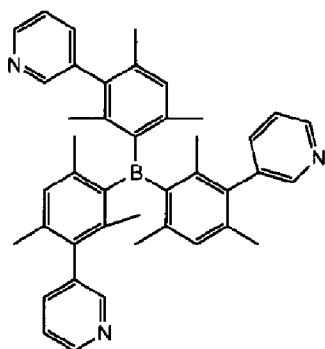
[化34]



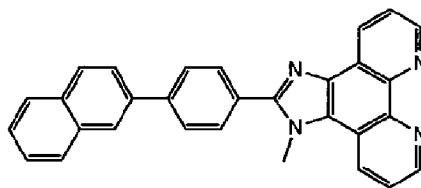
[0083]

[化35]

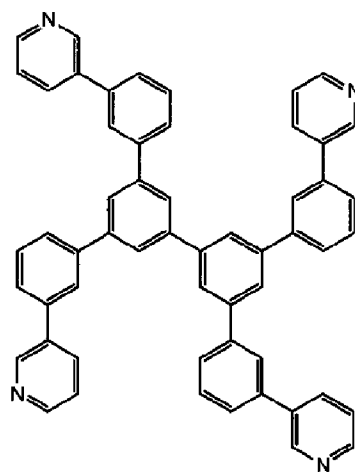
129



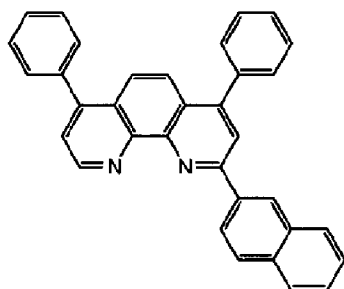
130



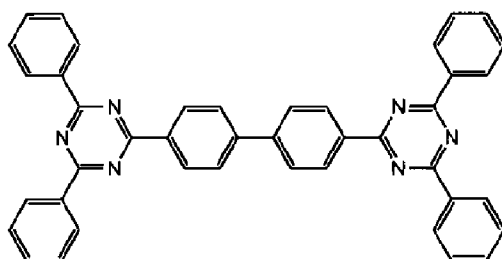
132



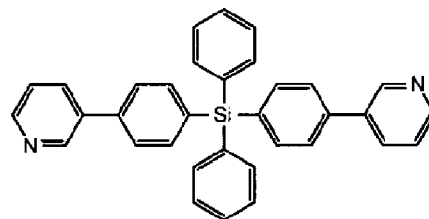
131



133



134

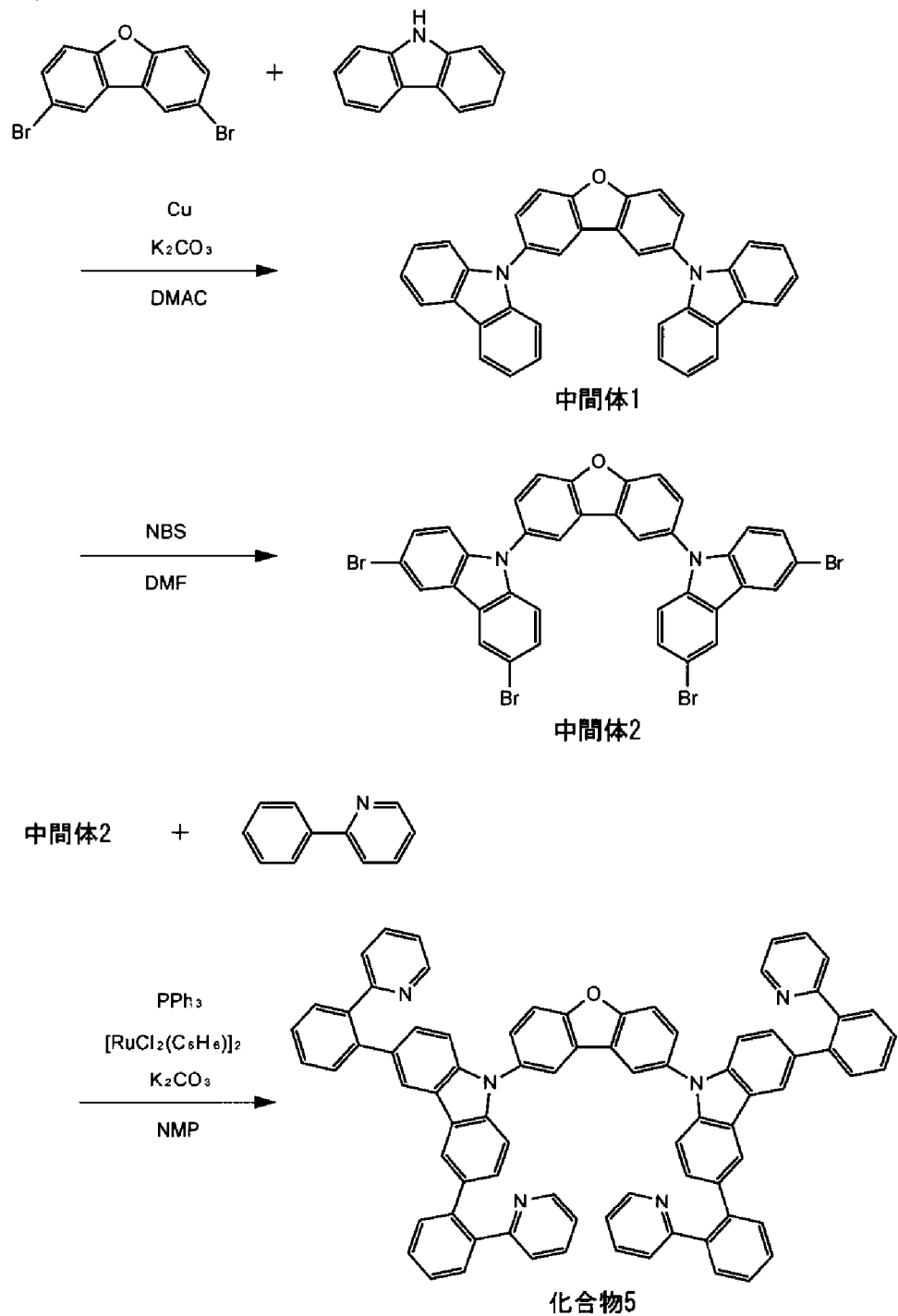


[0084] [化合物の合成例]

以下に代表的な化合物の合成例として、化合物5の具体的な合成例を示すが、これに限定されない。

[0085] [化36]

化合物5の合成



[0086] 工程 1 : (中間体 1 の合成)

窒素雰囲気下、2, 8-ジブロモジベンゾフラン (1. 0 モル)、カルバゾール (2. 0 モル)、銅粉末 (3. 0 モル)、炭酸カリウム (1. 5 モル)

）を、DMAc（ジメチルアセトアミド）300ml中で混合し、130℃で24時間攪拌した。これによって得た反応液を室温まで冷却後、トルエン1Lを加え、蒸留水で3回洗浄し、減圧雰囲気下において洗浄物から溶媒を留去し、その残渣をシリカゲルフラッシュクロマトグラフィー（n-ヘプタン：トルエン=4：1～3：1）にて精製し、中間体1を収率85%で得た。

[0087] 工程2：（中間体2の合成）

室温、大気下で中間体1（0.5モル）をDMF（ジメチルホルムアミド）100mlに溶解し、NBS（N-ブロモコハク酸イミド）（2.0モル）を加え、一晩室温で攪拌した。得られた沈殿を濾過し、メタノールで洗浄し、中間体2を収率92%で得た。

[0088] 工程3：（化合物5の合成）

窒素雰囲気下、中間体2（0.25モル）、2-フェニルピリジン（1.0モル）、ルテニウム錯体 $[(\eta^6-C_6H_6)RuCl_2]_2$ （0.05モル）、トリフェニルホスフィン（0.2モル）、炭酸カリウム（12モル）を、NMP（N-メチル-2-ピロリドン）3L中で混合し、140℃で一晩攪拌した。

[0089] 反応液を室温まで冷却後、ジクロロメタン5Lを加え、反応液を濾過した。次いで減圧雰囲気下（800Pa、80℃）において濾液から溶媒を留去し、その残渣をシリカゲルフラッシュクロマトグラフィー（CH₂Cl₂：Et₃N=20：1～10：1）にて精製した。

[0090] 減圧雰囲気下において、精製物から溶媒を留去した後、その残渣をジクロロメタンに再び溶解し、水で3回洗浄した。洗浄によって得られた物質を無水硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧雰囲気下において乾燥後の物質から溶媒を留去することにより、化合物5を収率68%で得た。

[0091] <透明導電層1b>

透明導電層1bは、銀または銀を主成分とした合金を用いて構成された層であって、窒素含有層1aに隣接して成膜された層である。

[0092] 透明導電層 1 b が、銀 (A g) で構成される場合、A g が 9 8 a t m s % 以上で含まれることとする。また透明導電層 1 b が、銀 (A g) を主成分とする合金で構成される場合、銀 (A g) を 5 0 a t m s % 以上を含むこととする。銀 (A g) と合わせて用いられる金属は、アルミニウム (A l)、インジウム (I n)、スズ (S n)、銅 (C u)、パラジウム (P d)、金 (A u)、プラチナ (P t)、マグネシウム (M g) などである。

[0093] 以上のような透明導電層 1 b は、銀または銀を主成分とした合金の層が、必要に応じて複数の層に分けて積層された構成であっても良い。

[0094] さらにこの透明導電層 1 b は、膜厚が 4 ~ 1 2 n m の範囲にあることが好ましい。膜厚が 1 2 n m 以下であることにより、層の吸収成分または反射成分が低く抑えられ、透明導電層の光透過率が維持されるため好ましい。また、膜厚が 4 n m 以上であることにより、層の導電性も確保される。

[0095] このような透明導電層 1 b の成膜方法としては、塗布法、インクジェット法、コーティング法、ディップ法などのウェットプロセスを用いる方法や、蒸着法（抵抗加熱、E B 法など）、スパッタ法、C V D 法などのドライプロセスを用いる方法などが挙げられる。なかでも蒸着法が好ましく適用される。また透明導電層 1 b は、窒素含有層 1 a 上に成膜されることにより、成膜後の高温アニール処理等がなくても十分に導電性を有することを特徴とするが、必要に応じて、成膜後に高温アニール処理等を行ったものであっても良い。

[0096] <透明導電層の効果>

以上のように構成された透明導電層 1 b は、窒素原子を含有する化合物を用いて構成された窒素含有層 1 a に隣接して、銀または銀を主成分とした合金を用いて設けられた構成である。これにより、窒素含有層 1 a に隣接させて透明導電層 1 b を成膜する際には、透明導電層 1 b を構成する銀原子が窒素含有層 1 a を構成する窒素原子を含んだ化合物と相互作用し、銀原子の窒素含有層 1 a 表面における拡散距離が減少し、銀の凝集が抑えられる。このため、一般的には核成長型 (V o l u m e r - W e b e r : V W 型) での

膜成長により島状に孤立し易い銀薄膜が、単層成長型（Frank-van der Merwe：FM型）の膜成長によって成膜されるようになる。したがって、薄い膜厚でありながらも、均一な膜厚の透明導電層 1 b が得られるようになる。

[0097] そして特に、窒素含有層 1 a を構成する化合物と、透明導電層 1 b を構成する銀との間に相互に作用するエネルギーとして、上記式（1）に示した有効作用エネルギー ΔE_{ef} を定義し、この値が $-0.5 \leq \Delta E_{ef} \leq -0.10$ となる化合物を用いて窒素含有層 1 a を構成するようにした。これにより、上述したような「銀の凝集を抑える」効果が確実に得られる化合物を用いて、窒素含有層 1 a を形成することが可能になる。これは、後の実施例で詳細に説明するように、このような窒素含有層 1 a 上には、極薄膜でありながらも四探針法などによるシート抵抗の測定が可能な透明導電層 1 b が形成されることから確認された。

[0098] 以上の結果、このような窒素含有層 1 a に隣接させて、薄い膜厚であることで光透過性を確保しつつも、均一な膜厚であることで導電性が確保された透明導電層 1 b を確実に得ることができ、銀を用いた透明導電層 1 b における導電性の向上と光透過性の向上との両立を図ることが可能になる。

[0099] またこのような透明導電層 1 b は、レアメタルであるインジウム（In）を主成分として用いていないため低コストであり、また ZnO のような化学的に不安定な材料を用いていないため長期信頼性にも優れている。

[0100] 尚、上述した構成の透明導電層 1 b は、以下に説明するような有機電界発光素子への適用に限定されることはなく、各種電子デバイスに用いることができる。電子デバイスの例としては、有機電界発光素子の他、LED（light Emitting Diode）、液晶素子、太陽電池、タッチパネル等が挙げられ、これらの電子デバイスにおいて、光透過性を有する電極層として、上述の窒素含有層 1 a に隣接して配置された透明導電層 1 b を用いることができる。

[0101] ≪ 2. 第 1 実施形態 ≫

（2つの発光ユニット間に透明導電層を設けた例）

図2は、上述した透明導電層1bを用いたタンデム構造の有機電界発光素子の第1実施形態を示す断面構成図である。以下にこの図に基づいて有機電界発光素子EL-1の構成を説明する。

[0102] <有機電界発光素子EL-1の構成>

図2に示す有機電界発光素子EL-1は、基板11上に設けられており、基板11側から順に、第1電極5、1つ目の発光ユニット3-1、窒素含有層1a、透明導電層1b、2つ目の発光ユニット3-2、および第2電極7をこの順に積層して構成されている。この有機電界発光素子EL-1においては、2つの発光ユニット3-1、3-2間に、先に説明した窒素含有層1aと透明導電層1bとの積層体が挟持されているところが特徴的である。

[0103] 以下、有機電界発光素子EL-1を構成する主要各層の詳細を、基板11、第1電極5および第2電極7、窒素含有層1aおよび透明導電層1b、発光ユニット3-1、3-2、その他の構成要素、および有機電界発光素子の製造方法の順に説明する。

[0104] <基板11>

有機電界発光素子EL-1が設けられる基板11は、例えばガラス、プラスチック等を挙げることができるが、これらに限定されない。また、基板11は透明であっても不透明であってもよい。有機電界発光素子EL-1が、基板11側から光を取り出すボトムエミッション型である場合には、基板11は透明であることが好ましい。好ましく用いられる透明な基板11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。

[0105] ガラスとしては、例えば、シリカガラス、ソーダ石灰シリカガラス、鉛ガラス、ホウケイ酸塩ガラス、無アルカリガラス等が挙げられる。これらのガラス材料の表面には、窒素含有層1aとの密着性、耐久性、平滑性の観点から、必要に応じて、研磨等の物理的処理を施したり、無機物または有機物からなる被膜や、これらの被膜を組み合わせたハイブリッド被膜が形成される。

[0106] 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、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（TAC）、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類またはそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリルあるいはポリアリレート類、アートン（商品名JSR社製）あるいはアペル（商品名三井化学社製）といったシクロオレフィン系樹脂等が挙げられる。

[0107] 樹脂フィルムの表面には、無機物または有機物からなる被膜や、これらの被膜を組み合わせたハイブリッド被膜が形成されていてもよい。このような被膜およびハイブリッド被膜は、JIS-K-7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $90 \pm 2\%$ RH）が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下のバリア性フィルム（バリア膜等ともいう）であることが好ましい。またさらには、JIS-K-7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

[0108] 以上のようなバリア性フィルムを形成する材料としては、水分や酸素等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、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。さらに当該バリア性フィルムの脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層（有機層）の積層構造を持たせることがより好ましい。無機層と有機層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。

[0109] バリア性フィルム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号公報に記載の大気圧プラズマ重合法によるものが特に好ましい。

[0110] 一方、基板11が不透明なものである場合、例えば、アルミニウム、ステンレス等の金属基板、フィルムや不透明樹脂基板、セラミック製の基板等を用いることができる。

[0111] <第1電極5および第2電極7>

第1電極5および第2電極7は、何れか一方が発光ユニット3-1, 3-2に正孔を供給するための陽極として機能し、何れか他方が発光ユニット3-1, 3-2に電子を供給するための陰極として機能する。ここでは一例として、基板11側の第1電極5が陽極、これと逆の第2電極7が陰極であることとする。

[0112] また第1電極5および第2電極7は、少なくとも一方または両方が透明電極として機能する電極層である。例えば、基板11側の第1電極5が透明電極として構成されている場合、発光ユニット3-1, 3-2で発生した発光光hは基板11側から取り出され、この有機電界発光素子EL-1はボトムエミッション型となる。一方、第2電極7が透明電極として構成されている場合、発光ユニット3-1, 3-2で発生した発光光hは基板11と逆側から取り出され、この有機電界発光素子EL-1はトップエミッション型となる。以上の場合、他方の電極が、反射電極として機能する電極膜であっても良い。これに対して、第1電極5と第2電極7の両方ともが透明電極として構成されている場合、この有機電界発光素子EL-1は両面発光型となる。ここでは例えば、第1電極5が透明電極として構成されていることとする。

[0113] 以上のような第1電極5および第2電極7は、金属、合金、有機または無

機の導電性化合物、およびこれらの混合物が用いられる。具体的には、金、アルミニウム、銀、マグネシウム、リチウム、マグネシウム／銅混合物、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属、 ITO 、 ZnO 、 TiO_2 、 SnO_2 等の酸化物半導体などが挙げられる。これらの材料の中から、陰極材料または陽極材料として適する材料を選択して第1電極5および第2電極7が構成されている。

[0114] また第1電極5および第2電極7のうちの光取り出し側となる電極（ここでは第1電極）は、これらの材料の中から光透過性の良好な材料を用いて構成されていることとする。このような材料としては、 ITO 、 ZnO 、 TiO_2 、 SnO_2 等の酸化物半導体などが挙げられる。

[0115] これらの第1電極5および第2電極7は、必要に応じた積層構造であっても良い。このような構成において、第1電極5と第2電極7とで発光ユニット3-1、3-2を挟持した部分のみが、有機電界発光素子EL-1における発光領域となる。

[0116] 以上のような第1電極5および第2電極7は、これらの導電性材料を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより作製することができる。この際、第1電極5および第2電極7としてのシート抵抗は、数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常5 nm～5 μm 、好ましくは5 nm～200 nmの範囲で選ばれる。また発光ユニット3-2の上部の第2電極は、蒸着法が適用される。

[0117] <窒素含有層1 aおよび透明導電層1 b>

窒素含有層1 aおよび透明導電層1 bは先に説明した構成のものであり、ここでは例えば基板11側から順に、窒素含有層1 a、透明導電層1 bが配置されている。ここで第1電極5が陽極、第2電極7が陰極である場合、透明導電層1 bは、第1電極（陽極）5側の発光ユニット3-1に対して陰極として機能し、一方、第2電極（陰極）7側の発光ユニット3-2に対して陽極として機能する。

[0118] そして、発光ユニット3-1と透明導電層1bとの間に挟持された窒素含有層1aは、発光ユニット3-1の一部を構成する層であるともみなされる。この場合、透明導電層1bは、発光ユニット3-1に対して陰極として機能するため、これらの間に挟持された窒素含有層1aは、上述した式(1)または式(2)を満たす材料のなかから、さらに電子輸送性または電子注入性を有する材料を用いて構成されることが好ましい。またこのような窒素含有層1aは、以降において電子輸送材料として例示する材料のなかから、さらに式(1)または式(2)を満たす材料を用いて構成されても良い。

[0119] 以上のように窒素含有層1aが電子輸送性または電子注入性を有する層として用いられる場合、この窒素含有層1aには、アルカリ金属やアルカリ金属塩、またはアルカリ土類金属やアルカリ土類金属塩などを混合して含有させることもできる。具体的には、リチウム、カリウム、ナトリウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウムなどの金属と、これらの塩を挙げることができる。混合添加する方法としては、窒素含有化合物との共蒸着などが好ましく挙げられる。これにより、陰極から注入された電子の発光層までの移動速度を向上させ、発光効率を向上させることができる。

[0120] 尚、第1電極5が陰極、第2電極7が陽極の場合であれば、透明導電層1bは第1電極(陰極)5側の発光ユニット3-1に対して陽極として機能する。このため、透明導電層1bと発光ユニット3-1との間の窒素含有層1aは、正孔輸送性または正孔注入性を有する材料を用いて構成されることが好ましい。

[0121] <発光ユニット3-1, 3-2>

発光ユニット3-1, 3-2は、全体的な層構造が限定されることはなく、それぞれが個別に一般的な層構造を有していて良い。一例として、陽極側から順に[正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層]を積層した構成が例示されるが、このうち少なくとも有機材料を用いて構成された発光層を有することが必須である。正孔注入層および正孔輸送層は、正孔輸送/注入層として設けられても良い。電子輸送層および電子注入層は、電子

輸送／注入層として設けられても良い。また各発光ユニット 3-1, 3-2を構成する各層のうち、例えば電子注入層は無機材料で構成されている場合もある。

[0122] また発光ユニット 3-1, 3-2は、これらの層の他にも正孔阻止層や電子阻止層等が必要に応じて必要箇所に積層されていて良い。さらに発光層は、各波長領域の発光光を発生させる各色発光層を有し、これらの各色発光層を、非発光性の中間層を介して積層させて発光層ユニットとして形成されていても良い。中間層は、正孔阻止層、電子阻止層として機能しても良い。

[0123] さらに発光ユニット 3-1, 3-2は、同一色の発光光 h が得られるように構成されていても良く、異なる色の発光光 h が得られるように構成されていても良い。

[0124] 以下、発光ユニット 3-1, 3-2を構成する各層について、発光層、注入層、正孔輸送層、電子輸送層、阻止層の順に説明する。

[0125] [発光層]

本発明に用いられる発光層は、発光材料として例えば燐光発光化合物が含有されている。

[0126] この発光層は、電極または電子輸送層から注入された電子と、正孔輸送層から注入された正孔とが再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接する層との界面であってもよい。

[0127] このような発光層としては、含まれる発光材料が発光要件を満たしていれば、その構成には特に制限はない。また、同一の発光スペクトルや発光極大波長を有する層が複数層あってもよい。この場合、各発光層間には非発光性の中間層（図示せず）を有していることが好ましい。

[0128] 発光層の膜厚の総和は $1 \sim 100 \text{ nm}$ の範囲にあることが好ましく、さらに好ましくは、より低い駆動電圧を得ることができることから $1 \sim 30 \text{ nm}$ である。尚、発光層の膜厚の総和とは、発光層間に非発光性の中間層が存在する場合には、当該中間層も含む膜厚である。

[0129] 複数層を積層した構成の発光層の場合、個々の発光層の膜厚としては、1

～50nmの範囲に調整することが好ましく、さらに好ましくは1～20nmの範囲に調整することがより好ましい。積層された複数の発光層が、青、緑、赤のそれぞれの発光色に対応する場合、青、緑、赤の各発光層の膜厚の関係については、特に制限はない。

[0130] 以上のような発光層は、後述する発光材料やホスト化合物を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜形成方法により成膜して形成することができる。

[0131] また発光層は、複数の発光材料を混合してもよく、また燐光発光材料と蛍光発光材料（蛍光ドーパント、蛍光性化合物ともいう）を同一発光層中に混合して用いてもよい。

[0132] 発光層の構成として、ホスト化合物（発光ホスト等ともいう）、発光材料（発光ドーパント化合物ともいう）を含有し、発光材料より発光させることが好ましい。

[0133] （ホスト化合物）

発光層に含有されるホスト化合物としては、室温（25℃）における燐光発光の燐光量子収率が0.1未満の化合物が好ましい。さらに好ましくは燐光量子収率が0.01未満である。また、発光層に含有される化合物の中で、その層中での体積比が50%以上であることが好ましい。

[0134] ホスト化合物としては、公知のホスト化合物を単独で用いてもよく、または複数種用いてもよい。ホスト化合物を複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機電界発光素子EL-1を高効率化することができる。また、後述する発光材料を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。

[0135] 用いられるホスト化合物としては、従来公知の低分子化合物でも、繰り返し単位をもつ高分子化合物でもよく、ビニル基やエポキシ基のような重合性基を有する低分子化合物（蒸着重合性発光ホスト）でもよい。

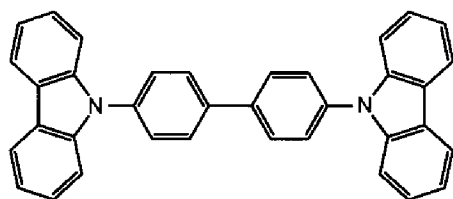
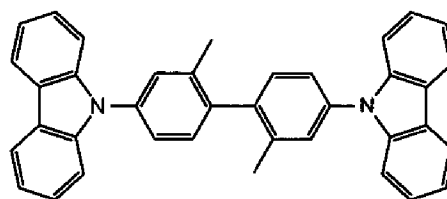
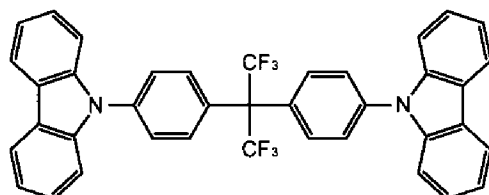
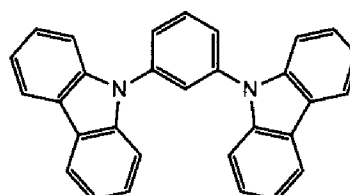
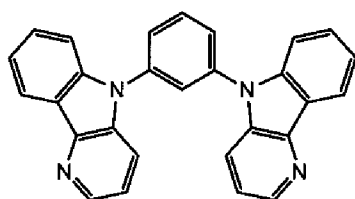
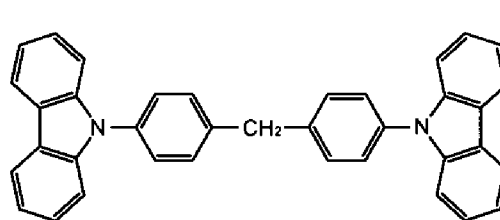
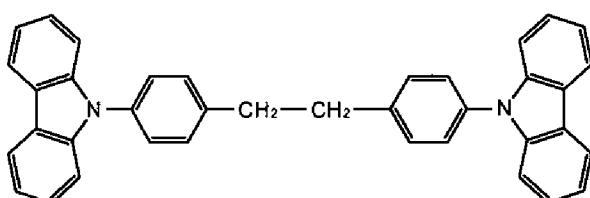
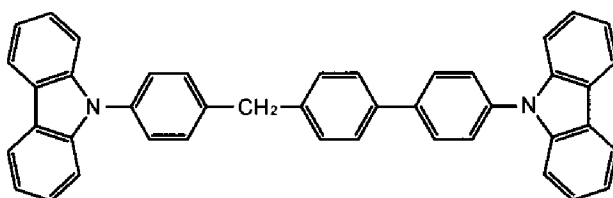
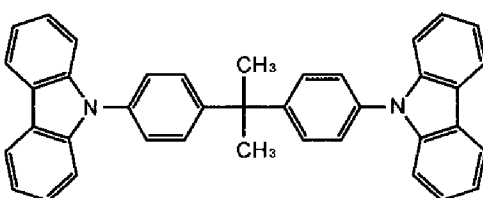
[0136] 公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、発光の長波長化を防ぎ、かつ高T_g（ガラス転移温度）化合物が好ましい。ここ

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

[0137] 以下に、本発明で用いることのできるホスト化合物の具体例 (H1～H79) を示すが、これらに限定されない。尚、ホスト化合物 H68～H79 において、 x 及び y はランダム共重合体の比率を表す。その比率は、例えば、 $x : y = 1 : 10$ などとすることができる。

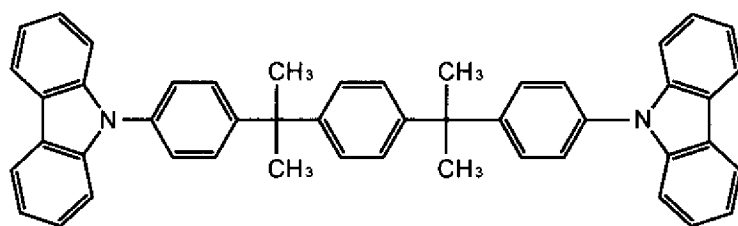
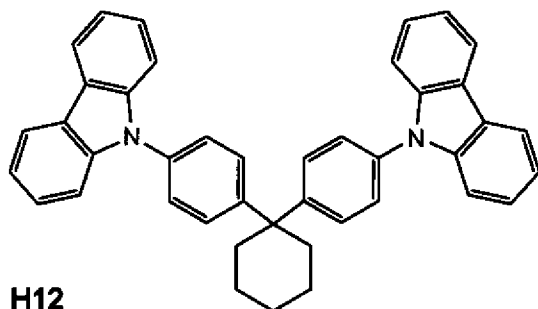
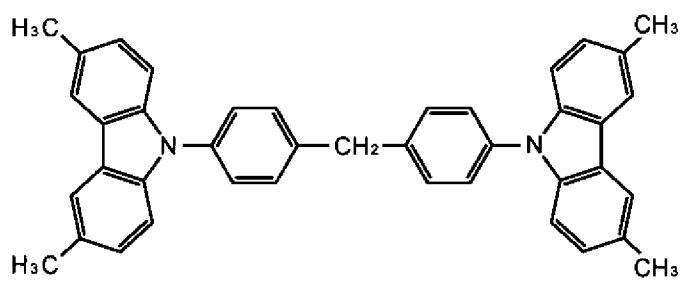
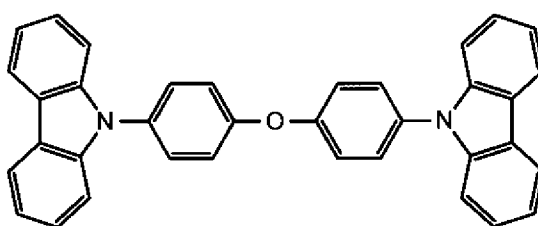
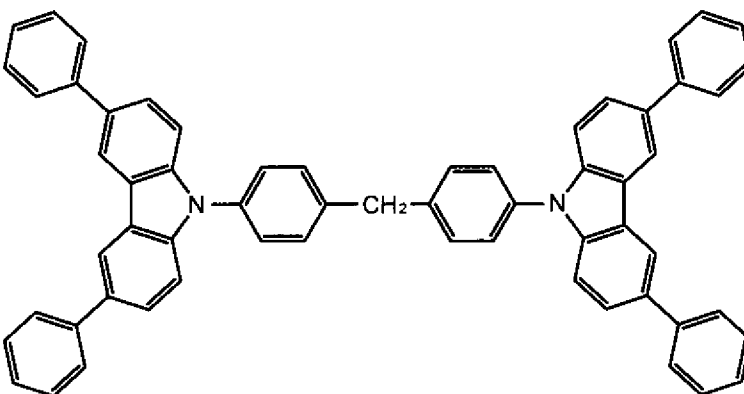
[0138]

[化37]

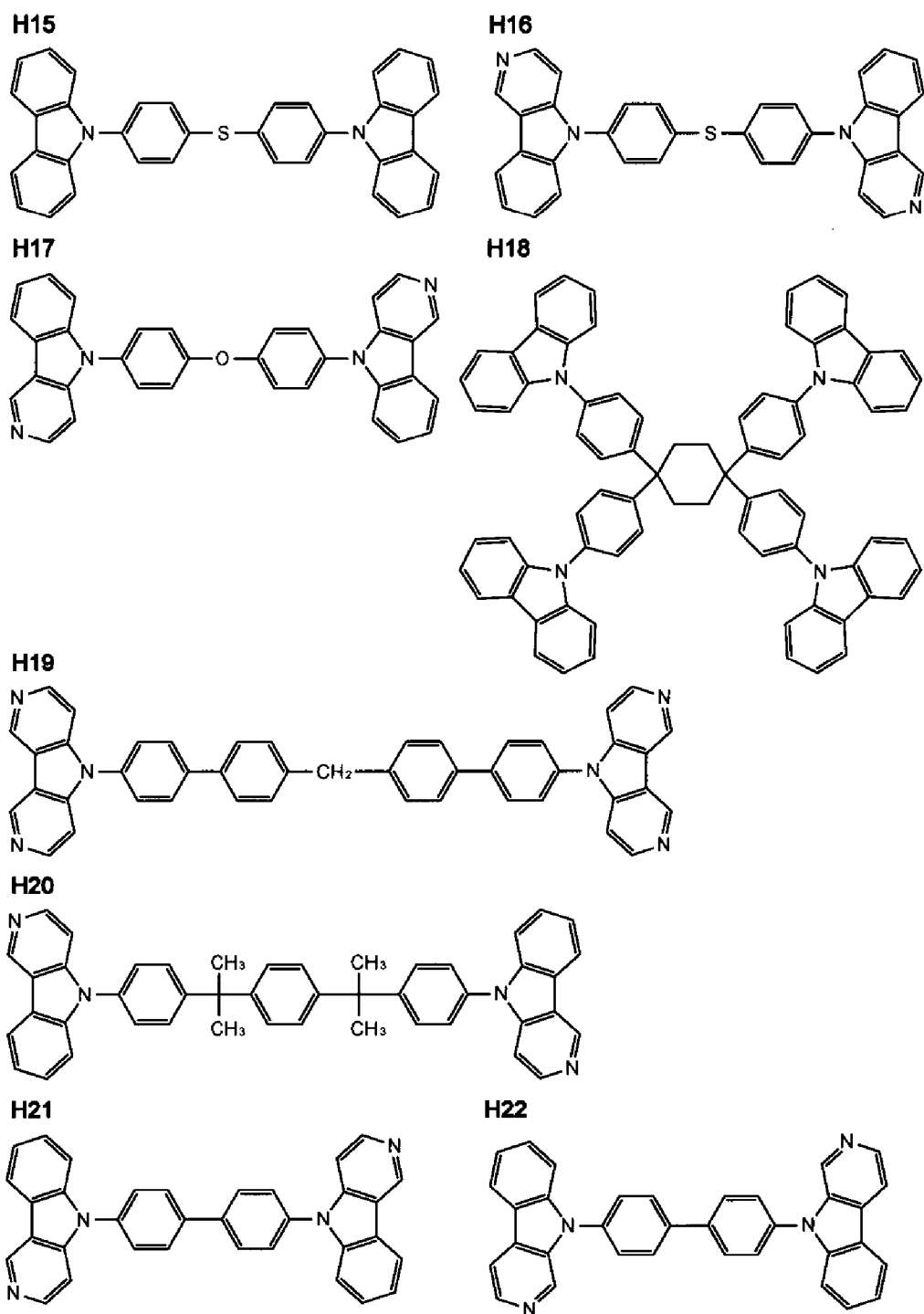
H1**H2****H3****H4****H5****H6****H7****H8****H9**

[0139]

[化38]

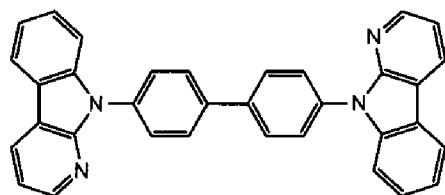
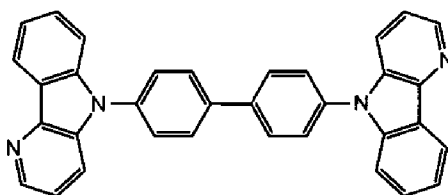
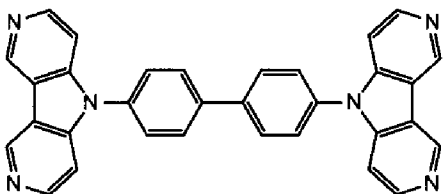
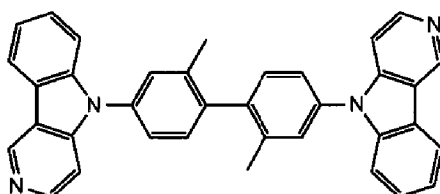
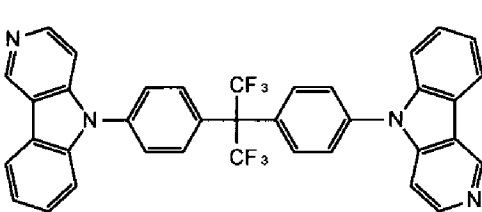
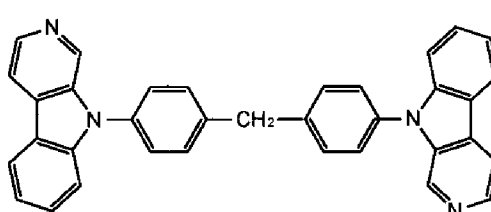
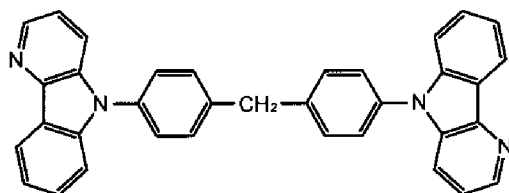
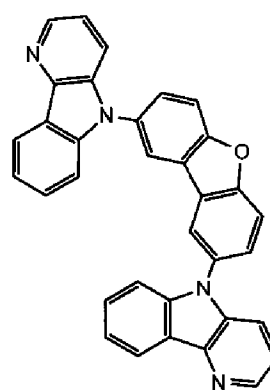
H10**H11****H12****H13****H14**

[0140] [化39]



[0141]

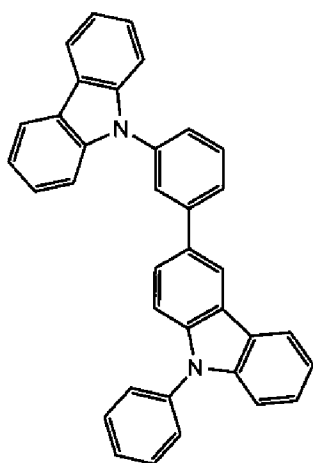
[化40]

H23**H24****H25****H26****H27****H28****H29****H30**

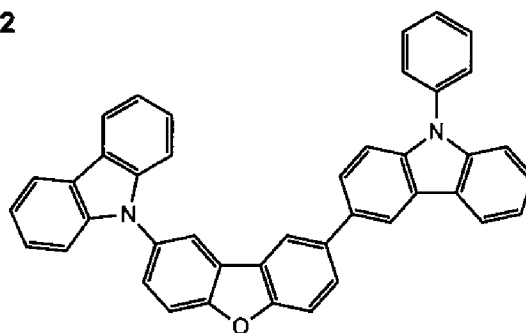
[0142]

[化41]

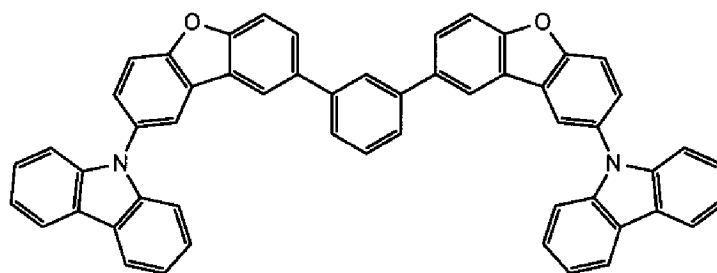
H31



H32

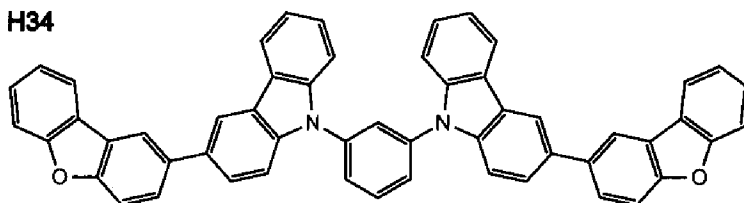
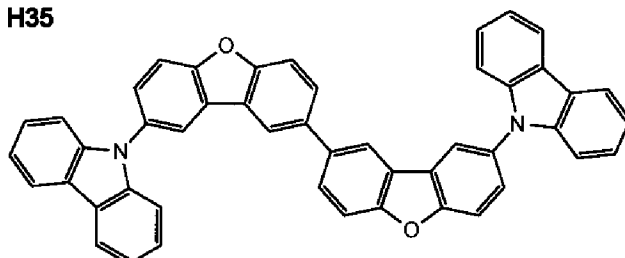
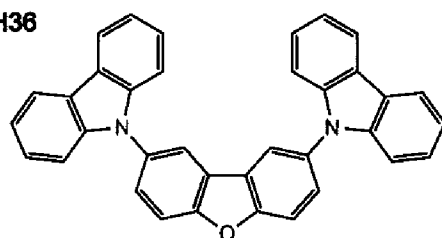
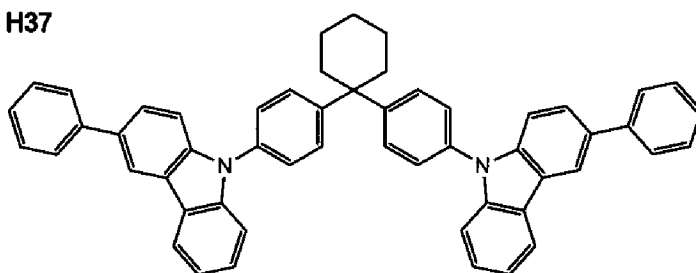
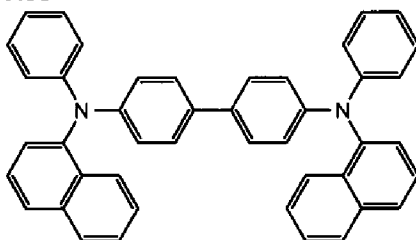
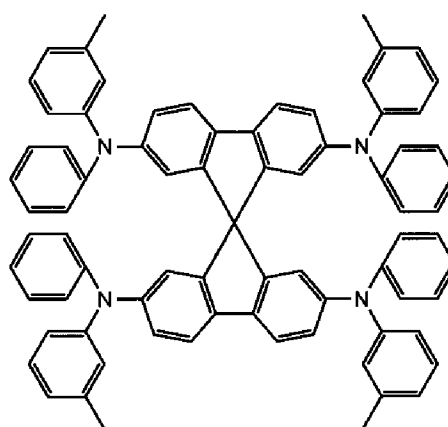


H33



[0143]

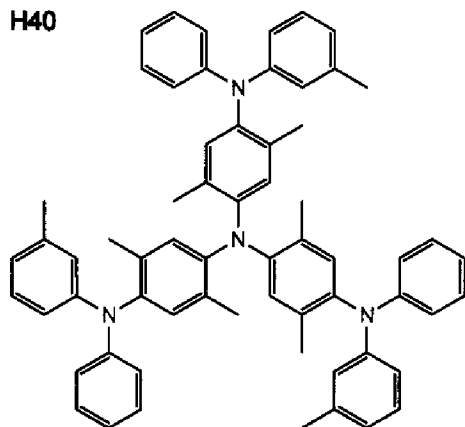
[化42]

H34**H35****H36****H37****H38****H39**

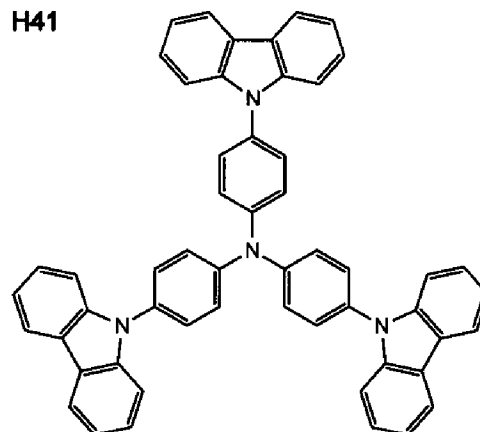
[0144]

[化43]

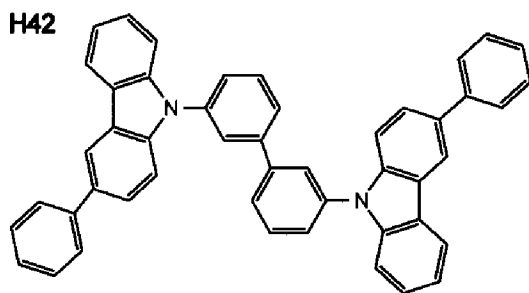
H40



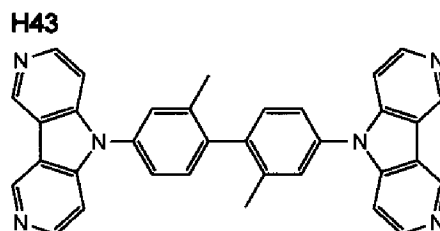
H41



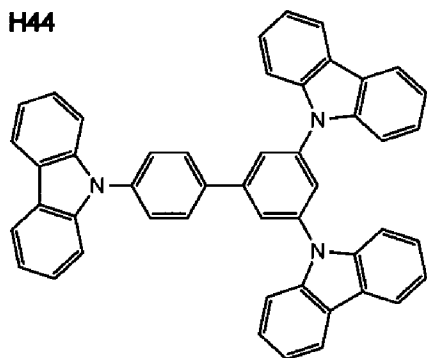
H42



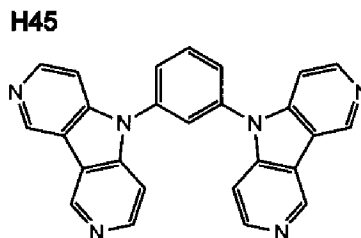
H43



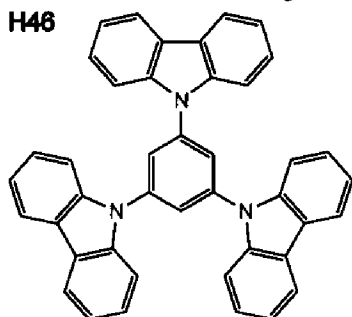
H44



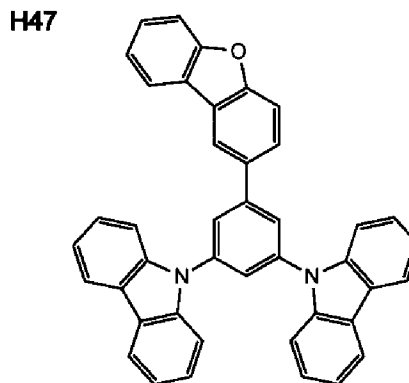
H45



H46

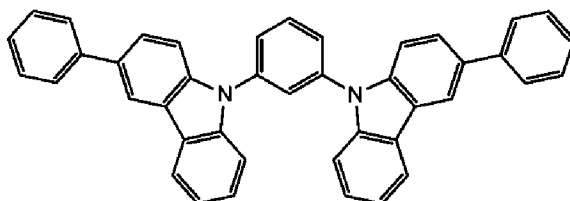
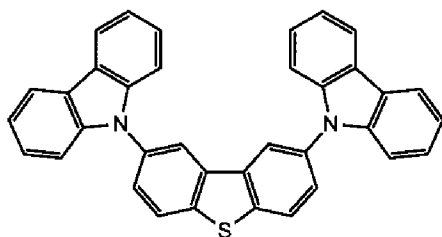
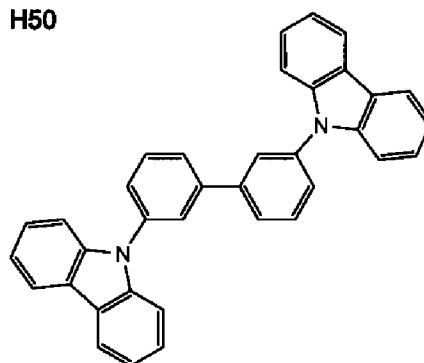
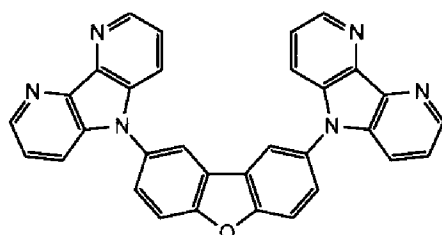
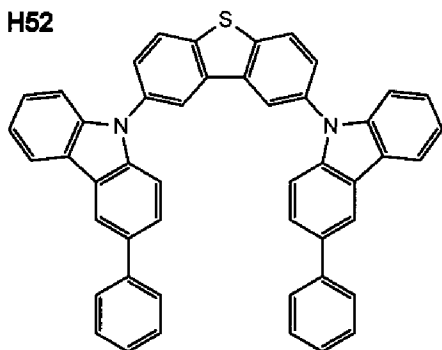
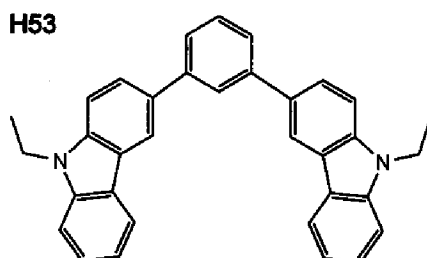
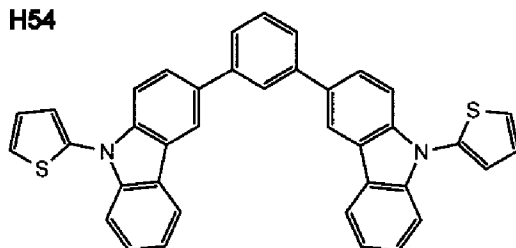
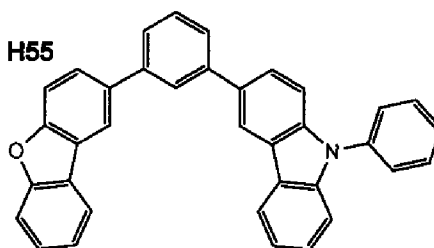


H47



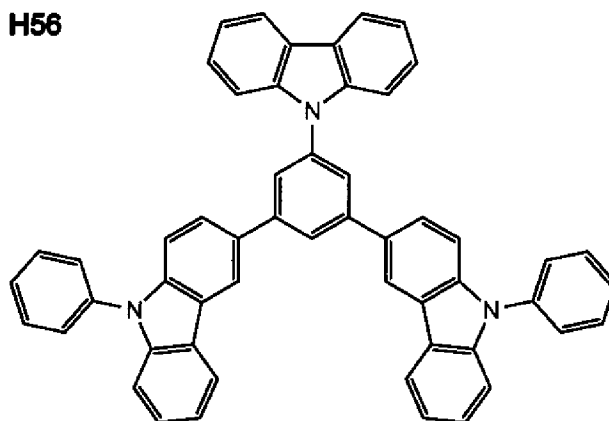
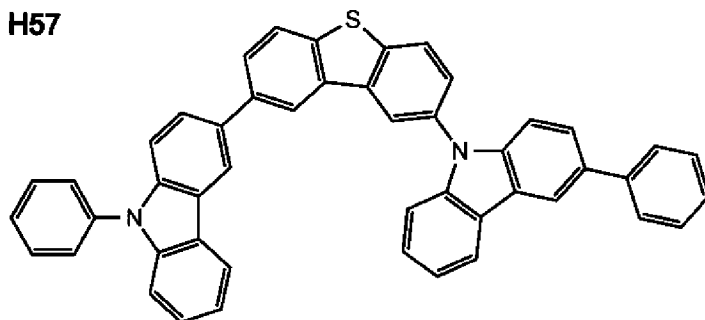
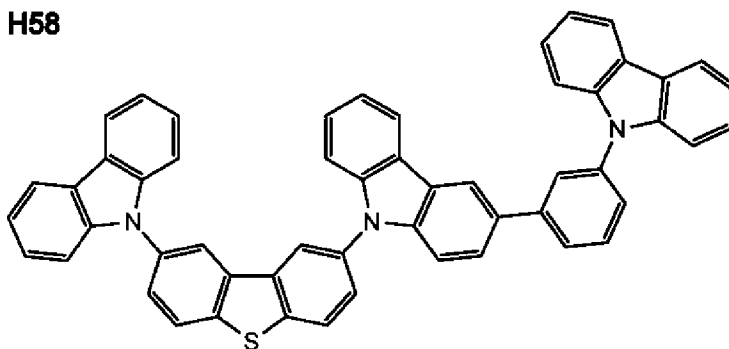
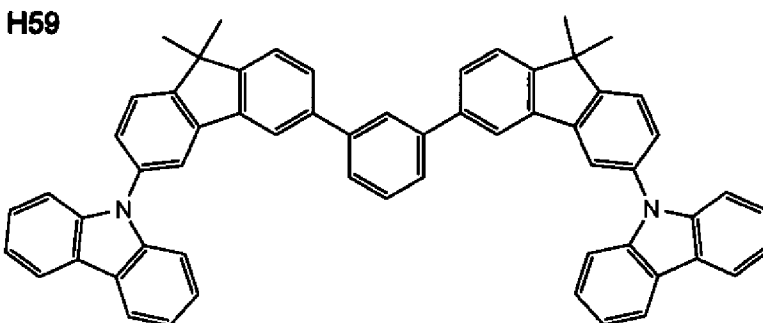
[0145]

[化44]

H48**H49****H50****H51****H52****H53****H54****H55**

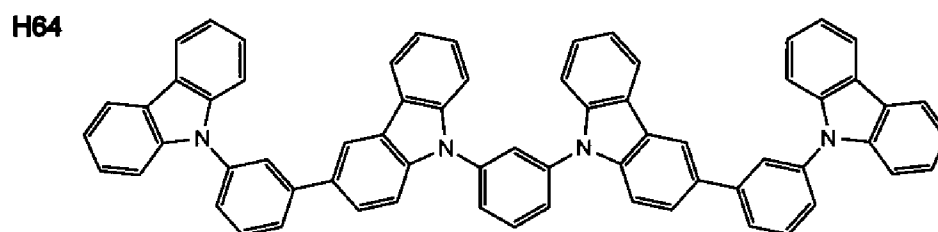
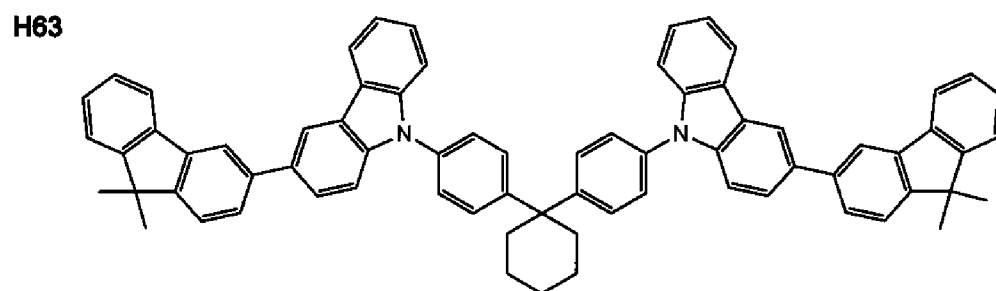
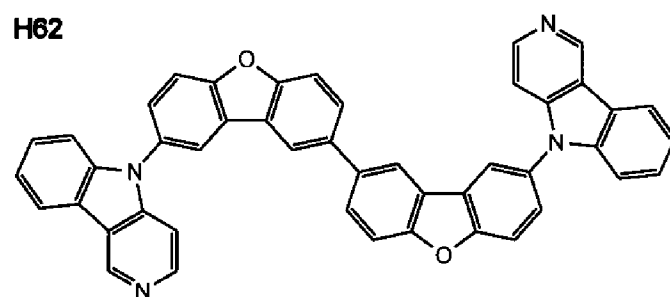
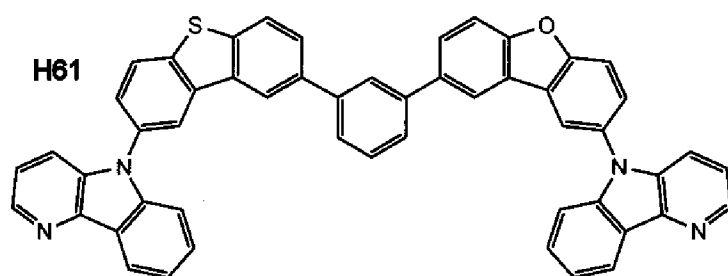
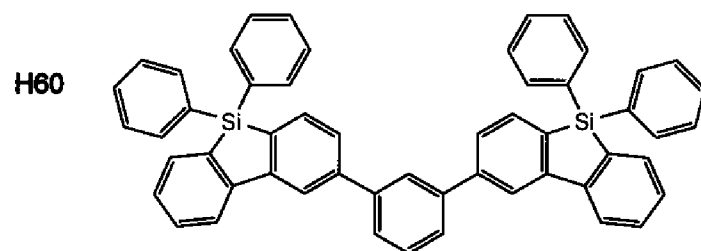
[0146]

[化45]

H56**H57****H58****H59**

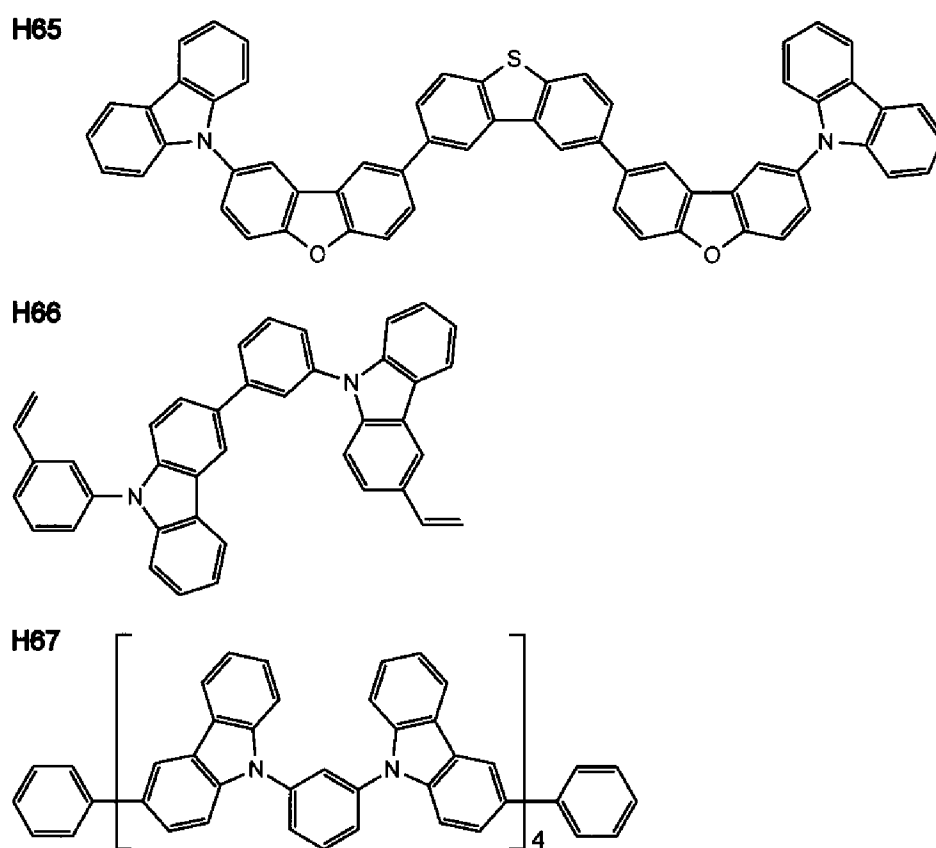
[0147]

[化46]



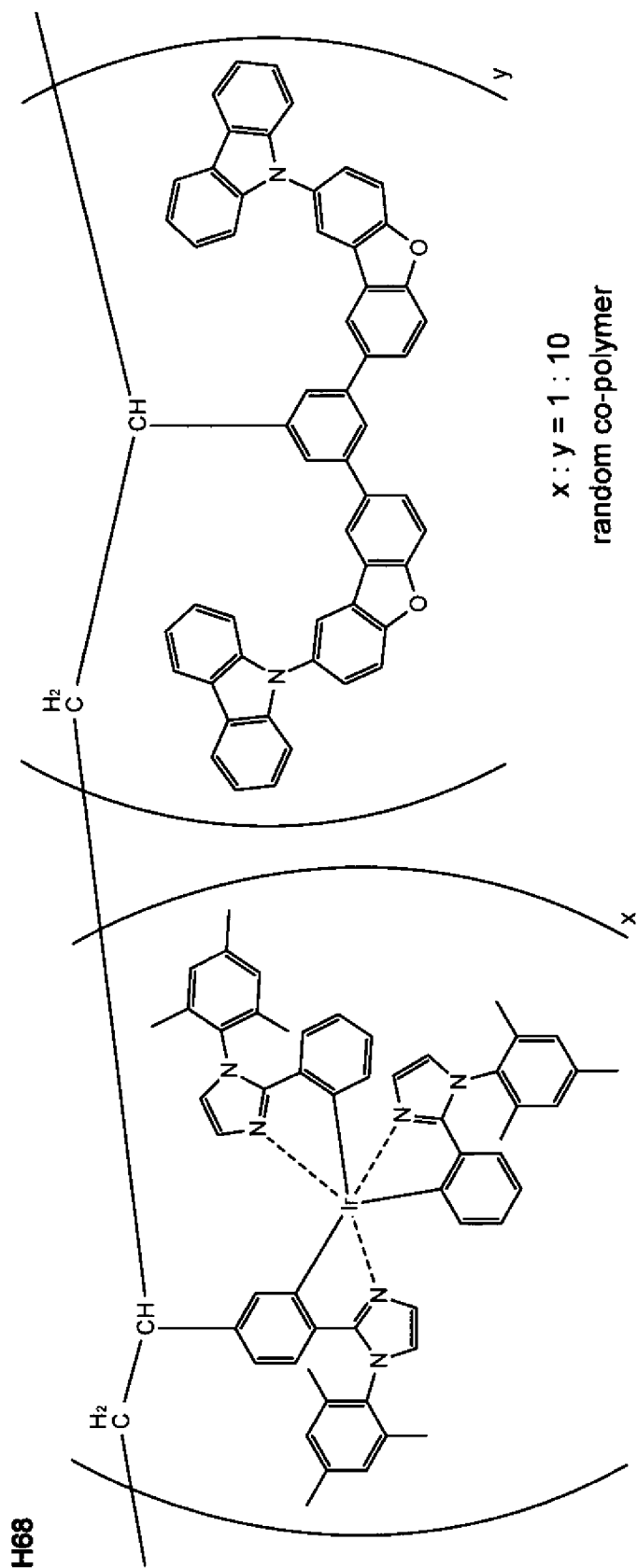
[0148]

[化47]

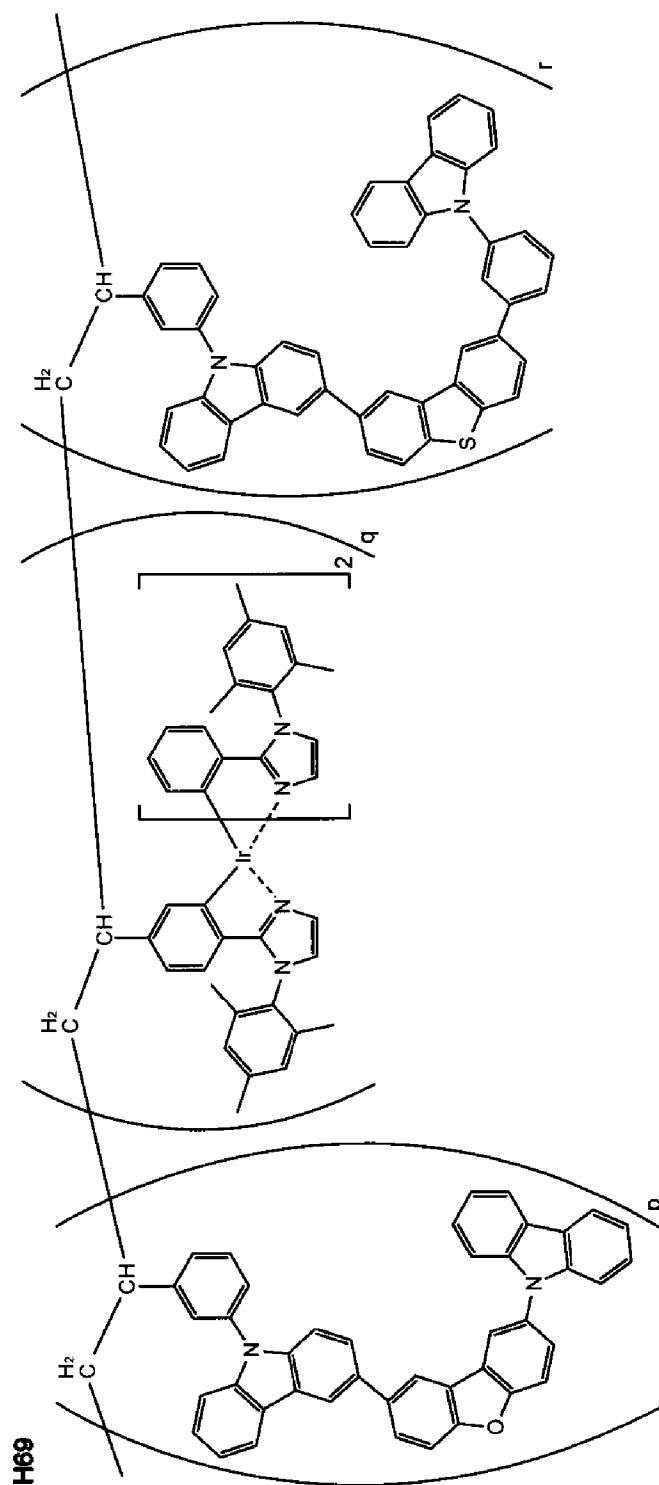


[0149]

[化48]

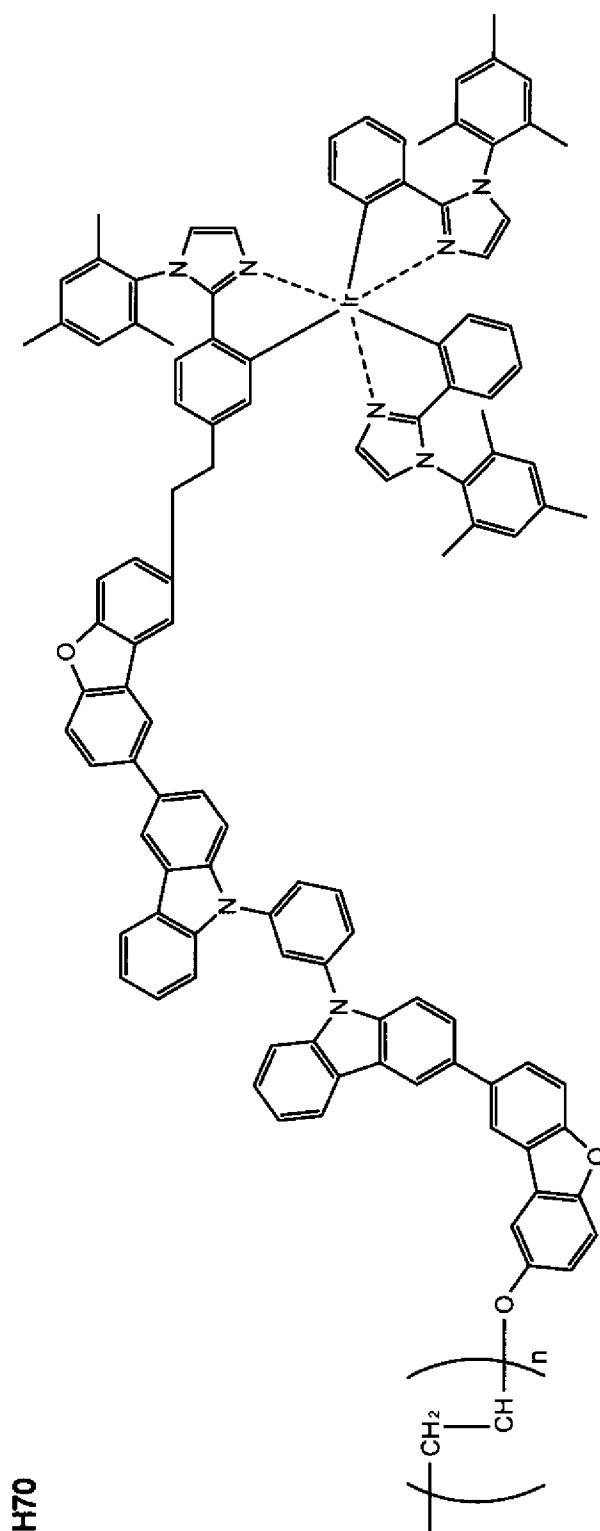


[0150] [化49]



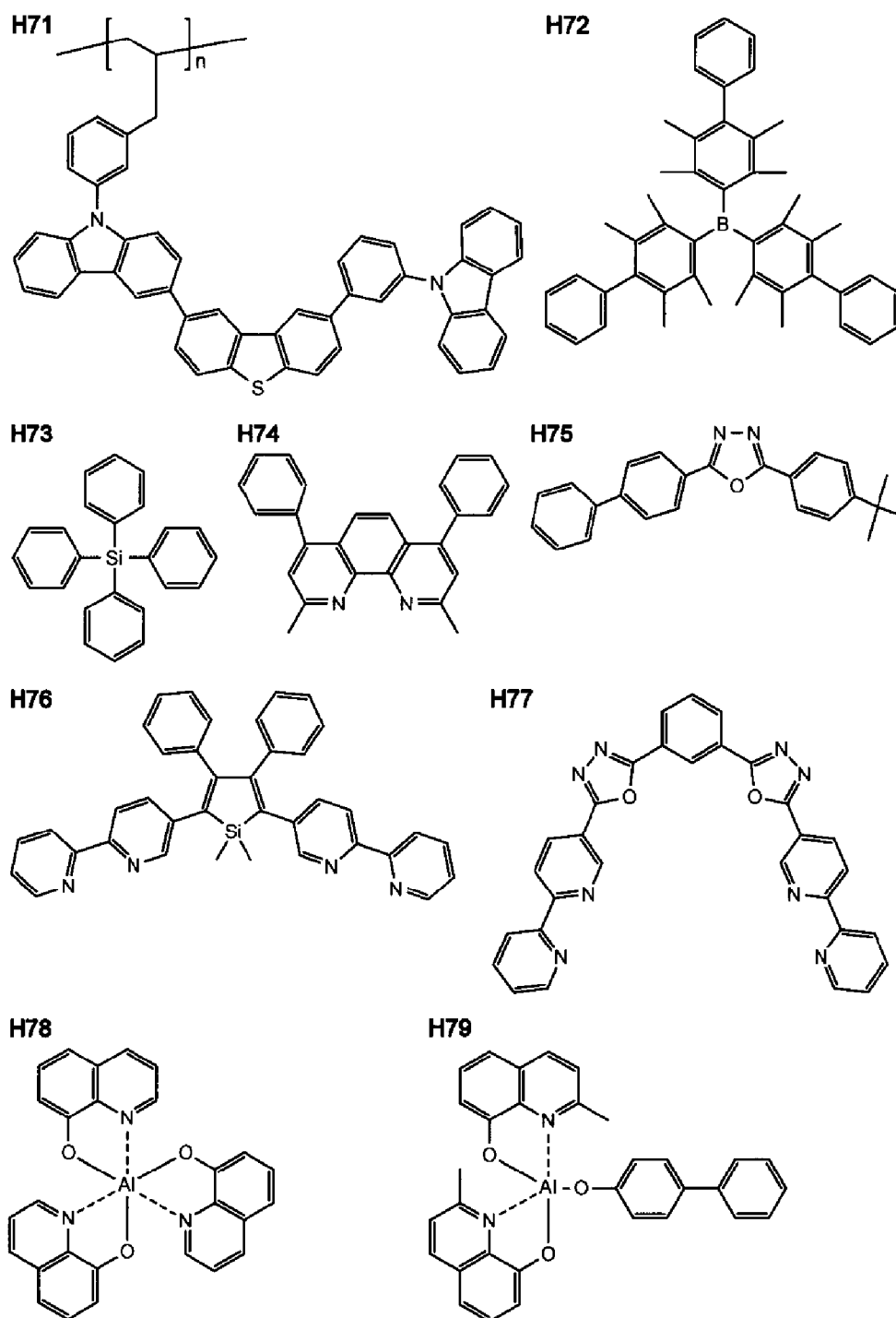
[0151]

[化50]



[0152]

[化51]



[0153] 公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合物を用いることもできる。例えば、特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002

－ 3 3 4 7 8 6 号公報、同 2 0 0 2 － 8 8 6 0 号公報、同 2 0 0 2 － 3 3 4 7 8 7 号公報、同 2 0 0 2 － 1 5 8 7 1 号公報、同 2 0 0 2 － 3 3 4 7 8 8 号公報、同 2 0 0 2 － 4 3 0 5 6 号公報、同 2 0 0 2 － 3 3 4 7 8 9 号公報、同 2 0 0 2 － 7 5 6 4 5 号公報、同 2 0 0 2 － 3 3 8 5 7 9 号公報、同 2 0 0 2 － 1 0 5 4 4 5 号公報、同 2 0 0 2 － 3 4 3 5 6 8 号公報、同 2 0 0 2 － 1 4 1 1 7 3 号公報、同 2 0 0 2 － 3 5 2 9 5 7 号公報、同 2 0 0 2 － 2 0 3 6 8 3 号公報、同 2 0 0 2 － 3 6 3 2 2 7 号公報、同 2 0 0 2 － 2 3 1 4 5 3 号公報、同 2 0 0 3 － 3 1 6 5 号公報、同 2 0 0 2 － 2 3 4 8 8 8 号公報、同 2 0 0 3 － 2 7 0 4 8 号公報、同 2 0 0 2 － 2 5 5 9 3 4 号公報、同 2 0 0 2 － 2 6 0 8 6 1 号公報、同 2 0 0 2 － 2 8 0 1 8 3 号公報、同 2 0 0 2 － 2 9 9 0 6 0 号公報、同 2 0 0 2 － 3 0 2 5 1 6 号公報、同 2 0 0 2 － 3 0 5 0 8 3 号公報、同 2 0 0 2 － 3 0 5 0 8 4 号公報、同 2 0 0 2 － 3 0 8 8 3 7 号公報等が挙げられる。

[0154] (発光材料)

本発明で用いることのできる発光材料としては、燐光発光性化合物（燐光性化合物、燐光発光材料ともいう）が挙げられる。

[0155] 燐光発光性化合物とは、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、具体的には室温（25℃）にて燐光発光する化合物であり、燐光量子収率が25℃において0.01以上の化合物であると定義されるが、好ましい燐光量子収率は0.1以上である。

[0156] 上記燐光量子収率は、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。溶液中での燐光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明において燐光発光性化合物を用いる場合、任意の溶媒のいずれかにおいて上記燐光量子収率（0.01以上）が達成されればよい。

[0157] 燐光発光性化合物の発光の原理としては2種挙げられる。一つは、キャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーを燐光発光性化合物に移動させること

で燐光発光性化合物からの発光を得るというエネルギー移動型であり、もう一つは、燐光発光性化合物がキャリアトラップとなり、燐光発光性化合物上でキャリアの再結合が起こり燐光発光性化合物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、燐光発光性化合物の励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件となる。

[0158] 燐光発光性化合物は、一般的な有機電界発光素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができるが、好ましくは元素の周期表で8～10族の金属を含有する錯体系化合物であり、さらに好ましくはイリジウム化合物、オスミウム化合物、または白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

[0159] 本発明においては、少なくとも一つの発光層に2種以上の燐光発光性化合物を含有していてもよく、発光層における燐光発光性化合物の濃度比が発光層の厚さ方向で変化していてもよい。

[0160] 燐光発光性化合物は好ましくは発光層の総量に対し0.1体積%以上30体積%未満である。

[0161] （一般式（3）で表される化合物）

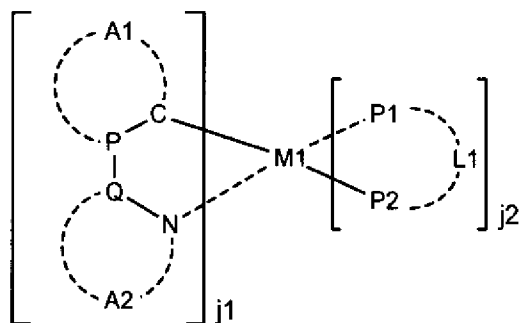
発光層に含まれる化合物（燐光発光性化合物）は、下記一般式（3）で表される化合物であることが好ましい。

[0162] 尚、一般式（3）で表される燐光発光性化合物（燐光発光性の金属錯体ともいう）は、有機電界発光素子EL-1の発光層に発光ドーパントとして含有されることが好ましい態様であるが、発光層以外の発光機能層に含有されていてもよい。

[0163]

[化52]

一般式 (3)



[0164] 上記一般式 (3) 中、P、Qは、各々炭素原子または窒素原子を表し、A1はP-Cと共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A2はQ-Nと共に芳香族複素環を形成する原子群を表す。P1-L1-P2は2座の配位子を表し、P1、P2は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L1はP1、P2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1～3の整数を表し、j2は0～2の整数を表すが、j1+j2は2または3である。M1は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。

[0165] 一般式 (3) において、P、Qは、各々炭素原子または窒素原子を表す。

[0166] そして、一般式 (3) において、A1が、P-Cと共に形成する芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、o-テルフェニル環、m-テルフェニル環、p-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。

[0167] これらの環はさらに、一般式 (1) において、E51～E66、E71～E88で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有しても良い。

[0168] 一般式 (3) において、A1が、P-Cと共に形成する芳香族複素環とし

ては、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環等が挙げられる。

[0169] ここで、アザカルバゾール環とは、前記カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が1つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

[0170] これらの環はさらに、一般式(1)において、E 5 1～E 6 6、E 7 1～E 8 8で各々表される $-C(R^3)=$ の R^3 で表される置換基を有しても良い。

[0171] 一般式(3)において、A 2が、Q-Nと共に形成する芳香族複素環としては、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

[0172] これらの環はさらに、一般式(1)において、E 5 1～E 6 6、E 7 1～E 8 8で各々表される $-C(R^3)=$ の R^3 で表される置換基を有しても良い。

[0173] 一般式(3)において、P 1-L 1-P 2は2座の配位子を表し、P 1、P 2は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L 1はP 1、P 2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。

[0174] P 1-L 1-P 2で表される2座の配位子としては、フェニルピリジン、フェニルピラゾール、フェニルイミダゾール、フェニルトリアゾール、フェニルテトラゾール、ピラザボール、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。

[0175] 一般式(3)において、j 1は1～3の整数を表し、j 2は0～2の整数

を表すが、 $j_1 + j_2$ は 2 または 3 を表す、中でも、 j_2 は 0 である場合が好ましい。

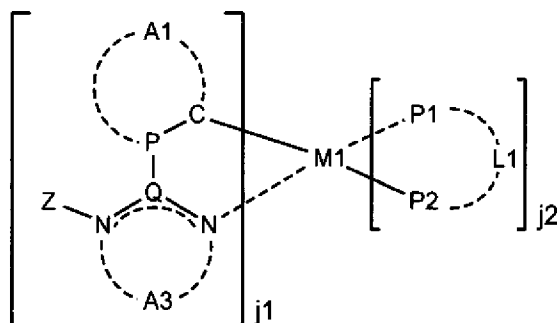
[0176] 一般式 (3) において、M1 は元素周期表における 8 族～10 族の遷移金属元素（単に遷移金属ともいう）が用いられるが、中でも、イリジウム好ましい。

[0177] （一般式 (4) で表される化合物）

一般式 (3) で表される化合物の中でも、下記一般式 (4) で表される化合物であることがさらに好ましい。

[0178] [化53]

一般式 (4)



[0179] 上記一般式 (4) 式中、Z は、炭化水素環基または複素環基を表す。P、Q は、各々炭素原子または窒素原子を表し、A1 は P-C と共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A3 は $-C(R_{O1})=C(R_{O2})-$ 、 $-N=C(R_{O2})-$ 、 $-C(R_{O1})=N-$ または $-N=N-$ を表し、 R_{O1} 、 R_{O2} は、各々水素原子または置換基を表す。P1-L1-P2 は 2 座の配位子を表し、P1、P2 は各々独立に炭素原子、窒素原子、または酸素原子を表す。L1 は P1、P2 と共に 2 座の配位子を形成する原子群を表す。 j_1 は 1～3 の整数を表し、 j_2 は 0～2 の整数を表すが、 $j_1 + j_2$ は 2 または 3 である。M1 は元素周期表における 8 族～10 族の遷移金属元素を表す。

[0180] 一般式 (4) において、Z で表される炭化水素環基としては、非芳香族炭化水素環基、芳香族炭化水素環基が挙げられ、非芳香族炭化水素環基として

は、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でも後述する置換基を有していてもよい。

[0181] また、芳香族炭化水素環基（芳香族炭化水素基、アリール基等ともいう）としては、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、ビフェニリル基等が挙げられる。

[0182] これらの基は、無置換でもよく、一般式（１）において、E 5 1～E 6 6、E 7 1～E 8 8で各々表される－C（R 3）＝のR 3で表される置換基を有しても良い。

[0183] 一般式（４）において、Zで表される複素環基としては、非芳香族複素環基、芳香族複素環基等が挙げられ、非芳香族複素環基としては、例えば、エポキシ環、アジリジン環、チラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキサラン環、ピロリジン環、ピラゾリジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、ε-カプロラクトン環、ε-カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1，3-ジオキサン環、1，4-ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1，1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ〔2，2，2〕-オクタン環等から導出される基を挙げられる。

[0184] これらの基は、無置換でもよく、一般式（１）において、E 5 1～E 6 6、E 7 1～E 8 8で各々表される－C（R 3）＝のR 3で表される置換基を有しても良い。

[0185] 芳香族複素環基としては、例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基（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、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等が挙げられる。

[0186] これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)において、E51～E66、E71～E88で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有しても良い。

[0187] 好ましくは、Zで表される基は芳香族炭化水素環基または芳香族複素環基である。

[0188] 一般式(4)において、A1が、P-Cと共に形成する芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナфтаセン環、トリフェニレン環、オーテルフェニル環、m-テルフェニル環、p-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。

[0189] これらの環はさらに、一般式(1)において、E51～E66、E71～E88で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有しても良い。

[0190] 一般式(4)において、A1がP-Cと共に形成する芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾ

ール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、アザカルバゾール環等が挙げられる。

[0191] ここで、アザカルバゾール環とは、前記カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が1つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

[0192] これらの環はさらに、一般式(1)において、E 5 1～E 6 6、E 7 1～E 8 8で各々表される $-C(R 3)=$ のR 3で表される置換基を有しても良い。

[0193] 一般式(4)のA 3で表される、 $-C(R 0 1)=C(R 0 2)-$ 、 $-N=C(R 0 2)-$ 、 $-C(R 0 1)=N-$ において、R 0 1、R 0 2で各々表される置換基は、一般式(1)において、E 5 1～E 6 6、E 7 1～E 8 8で各々表される $-C(R 3)=$ のR 3で表される置換基と同義である。

[0194] 一般式(4)において、P 1-L 1-P 2で表される2座の配位子としては、フェニルピリジン、フェニルピラゾール、フェニルイミダゾール、フェニルトリアゾール、フェニルテトラゾール、ピラザボール、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。

[0195] また、j 1は1～3の整数を表し、j 2は0～2の整数を表すが、j 1+j 2は2または3を表す、中でも、j 2は0である場合が好ましい。

[0196] 一般式(4)において、M 1で表される元素周期表における8族～10族の遷移金属元素(単に遷移金属ともいう)は、一般式(3)において、M 1で表される元素周期表における8族～10族の遷移金属元素と同義である。

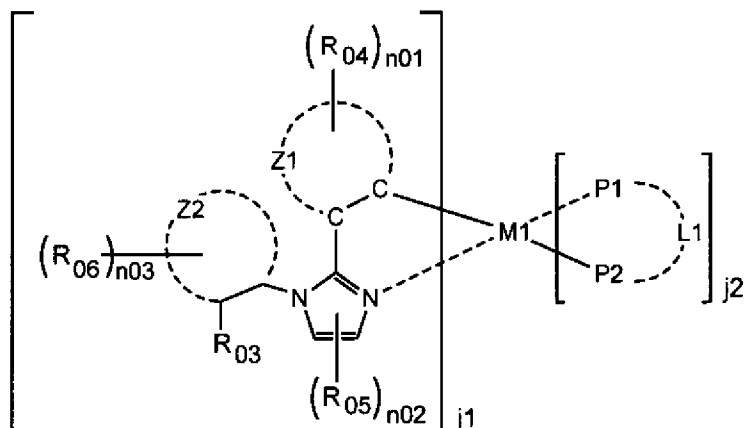
[0197] (一般式(5)で表される化合物)

上記一般式(4)で表される化合物の好ましい態様の一つとして、下記一般式(5)で表される化合物が挙げられる。

[0198]

[化54]

一般式 (5)



[0199] 上記一般式 (5) 式中、 R_{03} は置換基を表し、 R_{04} は水素原子または置換基を表し、複数の R_{04} は互いに結合して環を形成してもよい。 n_{01} は 1 ～ 4 の整数を表す。 R_{05} は水素原子または置換基を表し、複数の R_{05} は互いに結合して環を形成してもよい。 n_{02} は 1 ～ 2 の整数を表す。 R_{06} は水素原子または置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。 n_{03} は 1 ～ 4 の整数を表す。 Z_1 は C—C と共に 6 員の芳香族炭化水素環もしくは、5 員または 6 員の芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 Z_2 は炭化水素環基または複素環基を形成するのに必要な原子群を表す。 P_1 — L_1 — P_2 は 2 座の配位子を表し、 P_1 、 P_2 は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。 L_1 は P_1 、 P_2 と共に 2 座の配位子を形成する原子群を表す。 j_1 は 1 ～ 3 の整数を表し、 j_2 は 0 ～ 2 の整数を表すが、 $j_1 + j_2$ は 2 または 3 である。 M_1 は元素周期表における 8 族～10 族の遷移金属元素を表す。 R_{03} と R_{06} 、 R_{04} と R_{06} 及び R_{05} と R_{06} は互いに結合して環を形成していてもよい。

[0200] 一般式 (5) において、 R_{03} 、 R_{04} 、 R_{05} 、 R_{06} で各々表される置換基は、一般式 (1) において、 E_{51} ～ E_{66} 、 E_{71} ～ E_{88} で各々表される $-C(R_3)=$ の R_3 で表される置換基と同義である。

[0201] 一般式 (5) において、 Z_1 が C—C と共に形成する 6 員の芳香族炭化水

素環としては、ベンゼン環等が挙げられる。

[0202] これらの環はさらに、一般式(1)において、E51～E66、E71～E88で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有してもよい。

[0203] 一般式(5)において、Z1がC-Cと共に形成する5員または6員の芳香族複素環としては、例えば、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、チオフエン環、フラン環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

[0204] これらの環はさらに、一般式(1)において、E51～E66、E71～E88で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有してもよい。

[0205] 一般式(5)において、Z2で表される炭化水素環基としては、非芳香族炭化水素環基、芳香族炭化水素環基が挙げられ、非芳香族炭化水素環基としては、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でも後述する置換基を有していてもよい。

[0206] また、芳香族炭化水素環基（芳香族炭化水素基、アリール基等ともいう）としては、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、ビフェニリル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)において、E51～E66、E71～E88で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有してもよい。

[0207] 一般式(5)において、Z2で表される複素環基としては、非芳香族複素環基、芳香族複素環基等が挙げられ、非芳香族複素環基としては、例えば、エポキシ環、アジリジン環、チラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキサラン環、ピロリジン環、ピラゾ

リジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、 ε -カプロラクトン環、 ε -カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1, 3-ジオキサン環、1, 4-ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1, 1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ[2, 2, 2]-オクタン環等から導出される基を挙げることができる。これらの基は無置換でもよく、また、一般式(1)において、E 51~E 66、E 71~E 88で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有してもよい。

[0208] 芳香族複素環基としては、例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基（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、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等が挙げられる。

[0209] これらの環は無置換でもよく、さらに、一般式(1)において、E 51~E 66、E 71~E 88で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有してもよい。

[0210] 一般式(5)において、Z1及びZ2で形成される基としては、ベンゼン環が好ましい。

[0211] 一般式(5)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子は、一般式(3)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子と同義であ

る。

[0212] 一般式(5)において、M1で表される元素周期表における8族～10族の遷移金属元素は、一般式(3)において、M1で表される元素周期表における8族～10族の遷移金属元素と同義である。

[0213] また、燐光発光性化合物は、有機電界発光素子EL-1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。

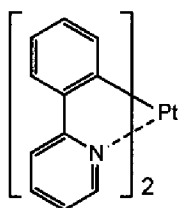
[0214] 本発明に係る燐光発光性化合物は、好ましくは元素の周期表で8～10族の金属を含有する錯体系化合物であり、さらに好ましくはイリジウム化合物、オスミウム化合物、または白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

[0215] 本発明に係る燐光発光性化合物の具体例（Pt-1～Pt-3、A-1、Ir-1～Ir-50）を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。尚、これらの化合物において、m及びnは繰り返し数を表す。

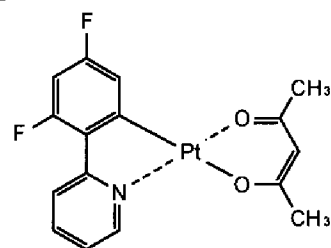
[0216]

[化55]

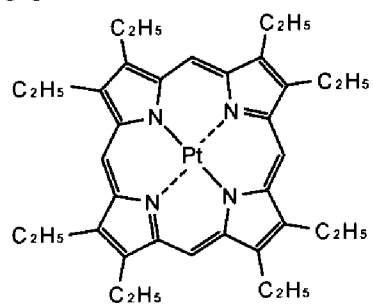
Pt-1



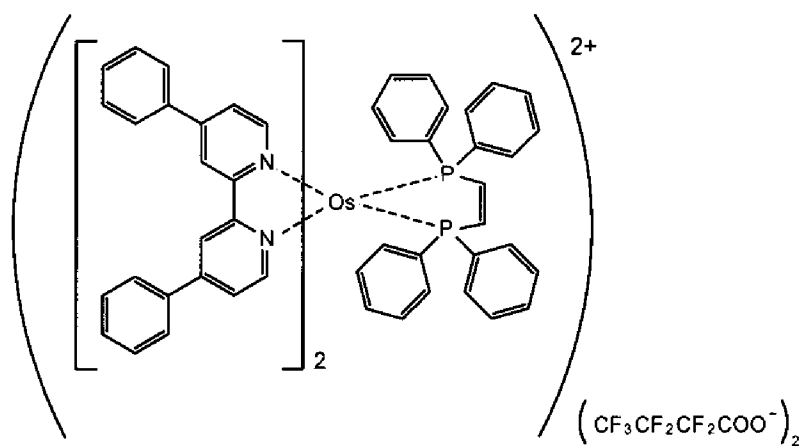
Pt-2



Pt-3



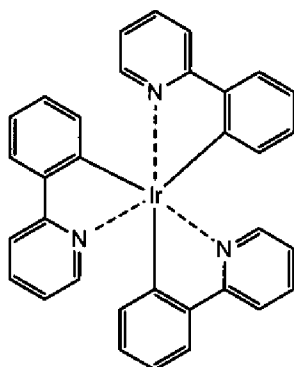
A-1



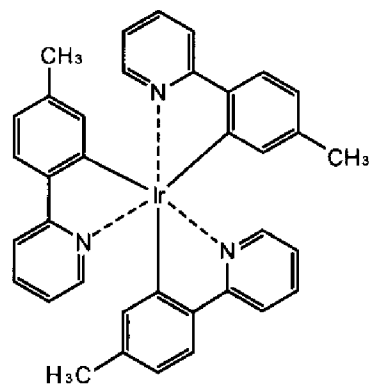
[0217]

[化56]

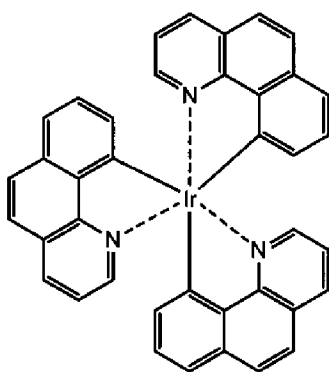
Ir-1



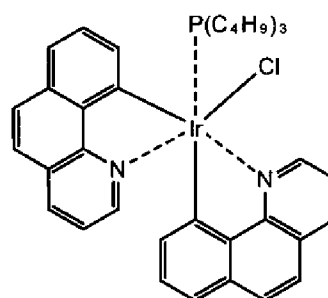
Ir-2



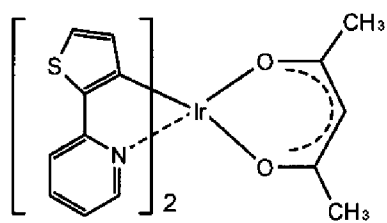
Ir-3



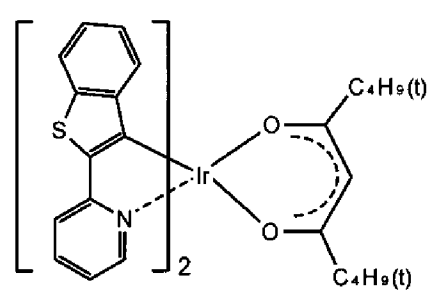
Ir-4



Ir-5



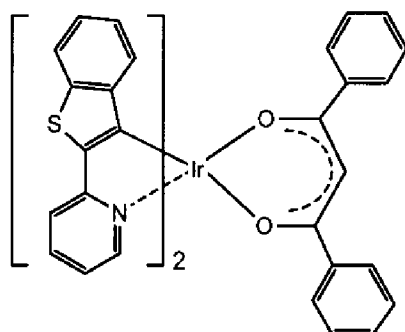
Ir-6



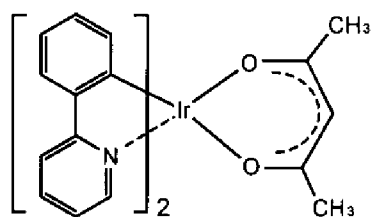
[0218]

[化57]

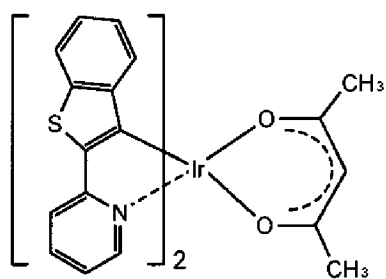
Ir-7



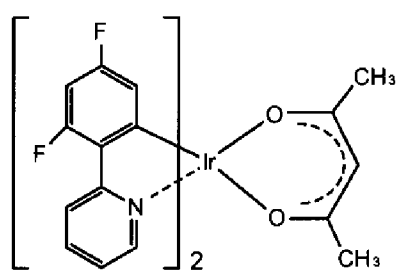
Ir-8



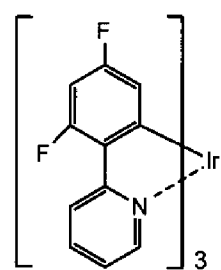
Ir-9



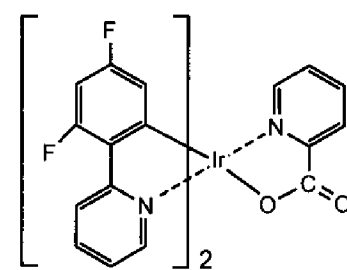
Ir-10



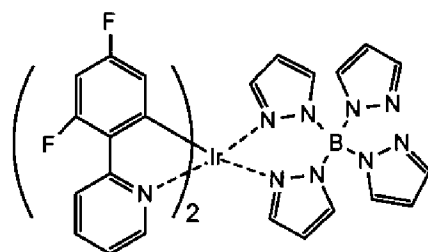
Ir-11



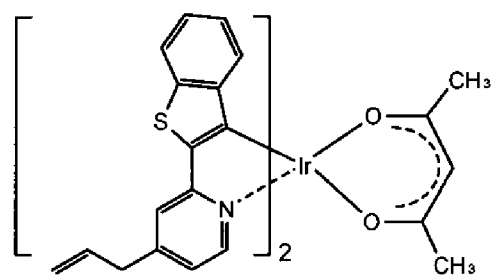
Ir-12



Ir-13



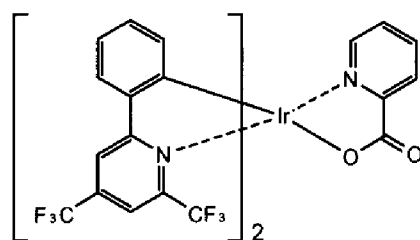
Ir-14



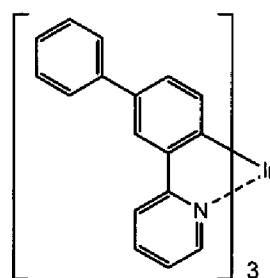
[0219]

[化58]

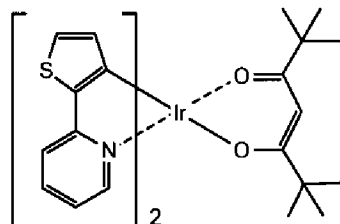
Ir-15



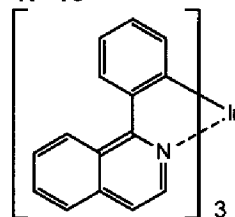
Ir-16



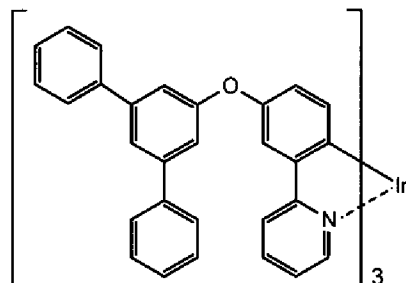
Ir-17



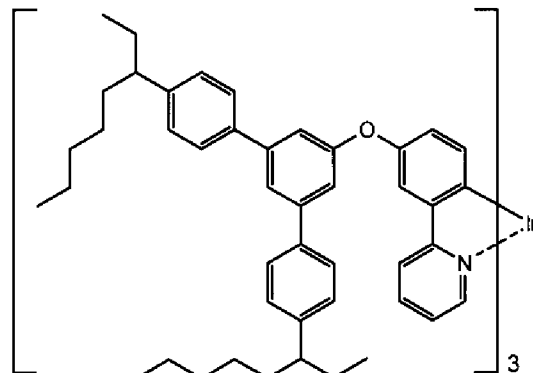
Ir-18



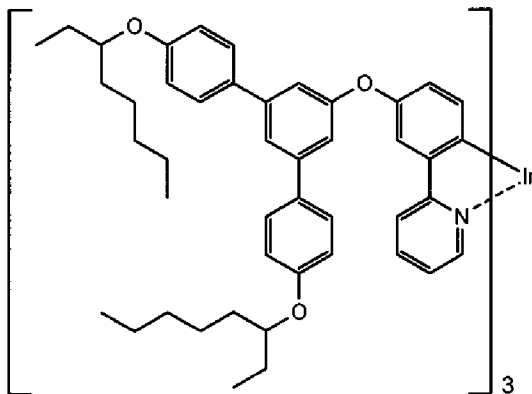
Ir-19



Ir-20

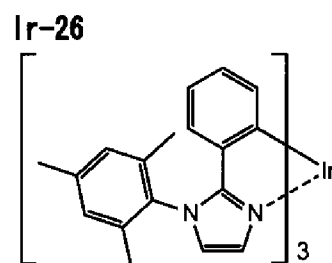
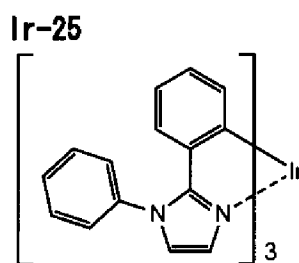
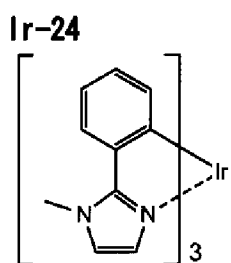
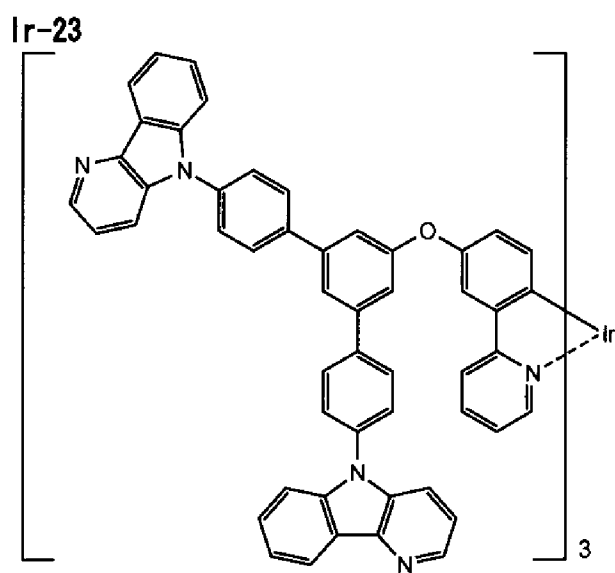
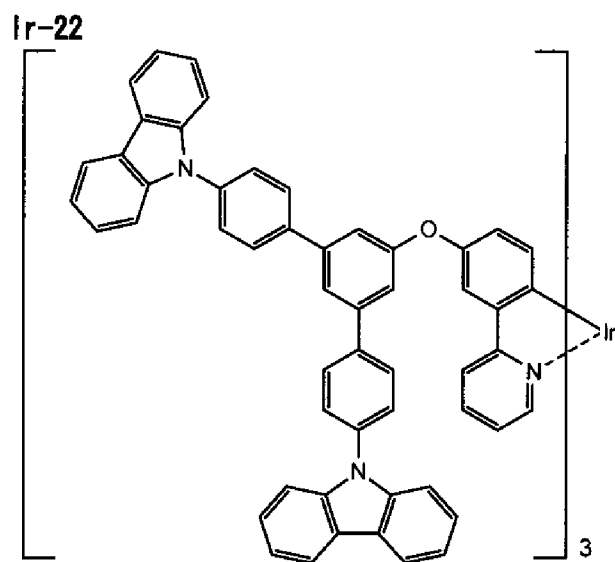


Ir-21



[0220]

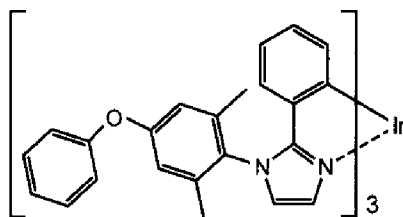
[化59]



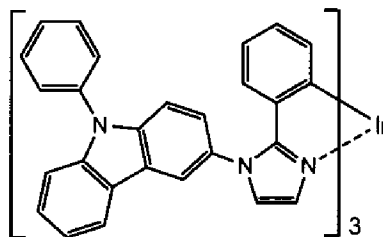
[0221]

[化60]

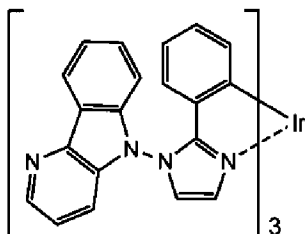
Ir-27



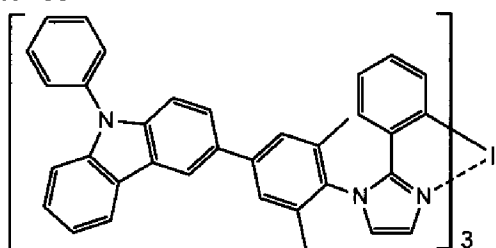
Ir-28



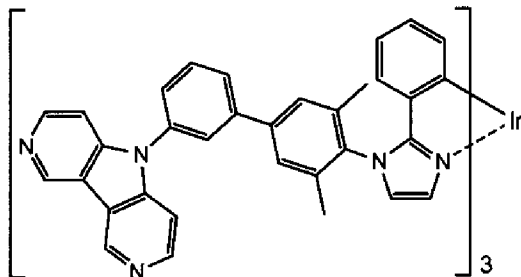
Ir-29



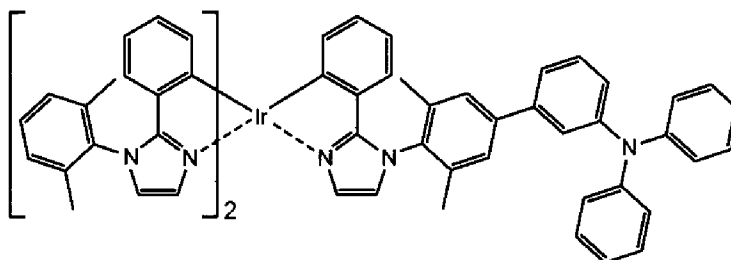
Ir-30



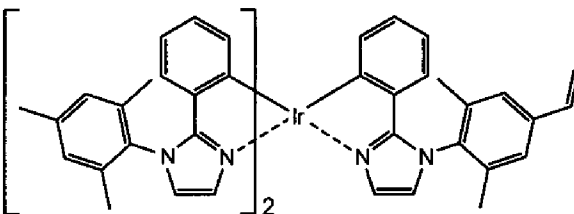
Ir-31



Ir-32



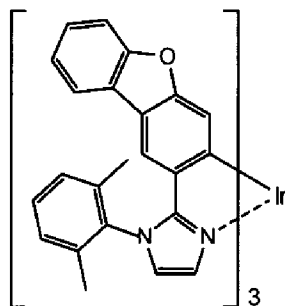
Ir-33



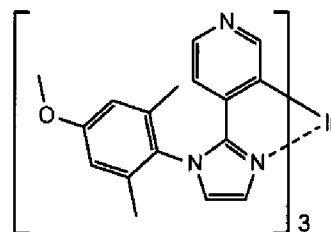
[0222]

[化61]

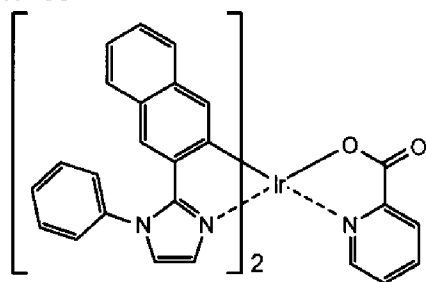
Ir-34



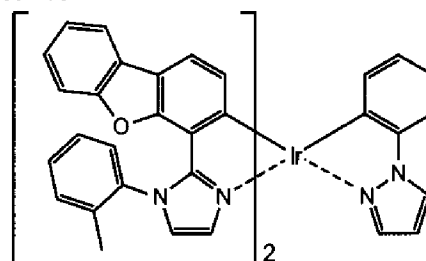
Ir-35



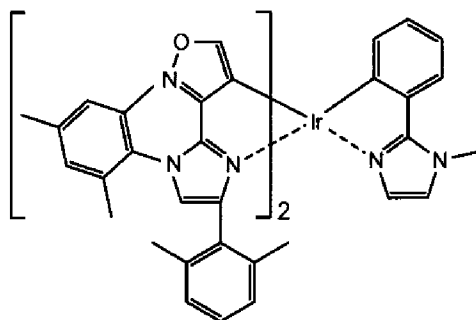
Ir-36



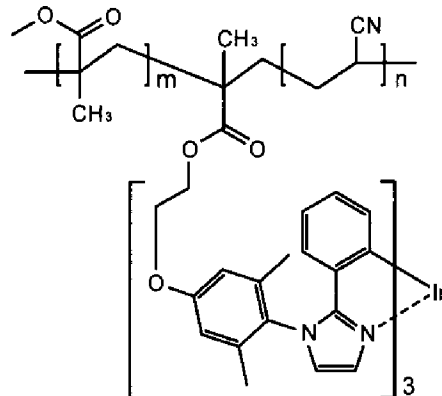
Ir-37



Ir-38

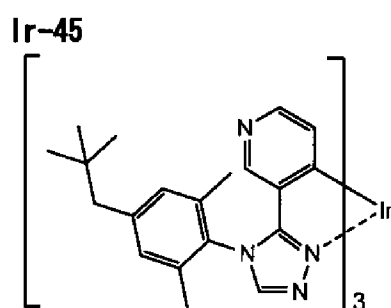
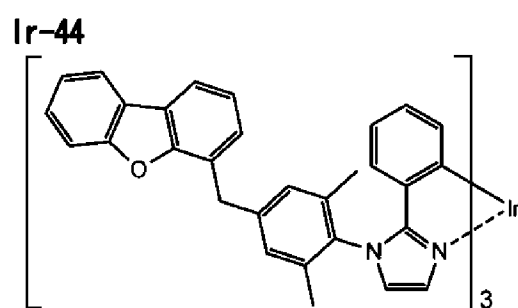
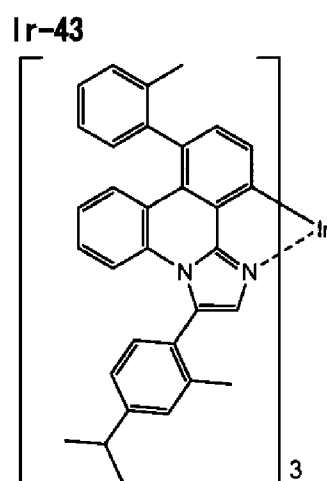
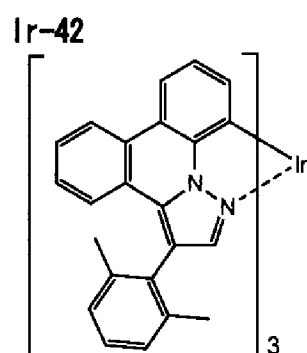
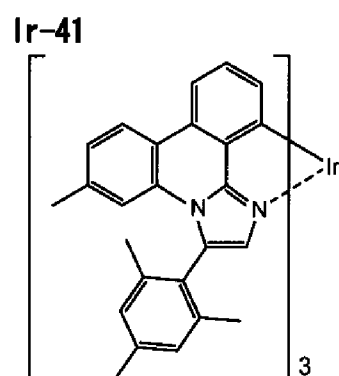
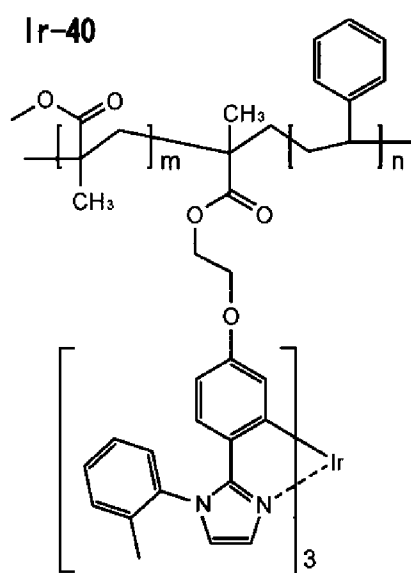


Ir-39



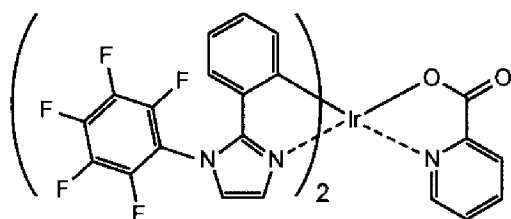
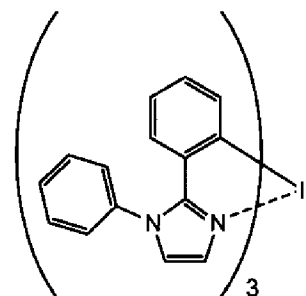
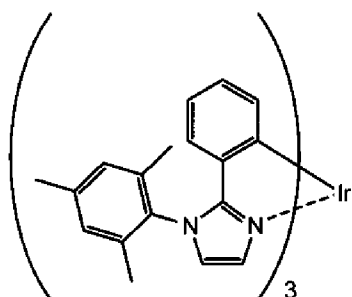
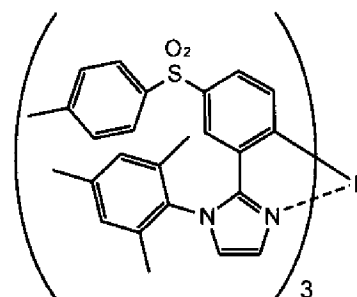
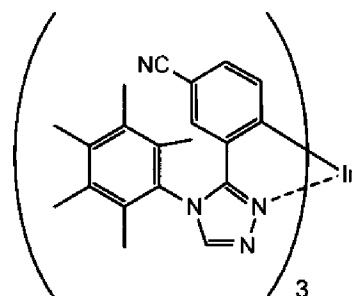
[0223]

[化62]



[0224]

[化63]

Ir-46**Ir-47****Ir-48****Ir-49****Ir-50**

[0225] 上記の蛍光発光性化合物（蛍光発光性金属錯体等ともいう）は、例えば、Organic Letters誌、vol. 3、No. 16、2579～2581頁（2001）、Inorganic Chemistry, 第30巻、第8号、1685～1687頁（1991年）、J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304頁（2001年）、Inorganic Chemistry, 第40巻、第7号、1704～1711頁（2001年）、Inorganic Chemistry, 第41巻、第12号、3

055～3066頁（2002年）、New Journal of Chemistry. , 第26巻、1171頁（2002年）、European Journal of Organic Chemistry, 第4巻、695～709頁（2004年）、さらにこれらの文献中に記載の参考文献等の方法を適用することにより合成できる。

[0226] （蛍光発光材料）

蛍光発光材料としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、または希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

[0227] [注入層：正孔注入層、電子注入層]

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と発光層の間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されており、正孔注入層と電子注入層とがある。

[0228] 注入層は、必要に応じて設けることができる。正孔注入層であれば、アノードと発光層または正孔輸送層の間、電子注入層であればカソードと発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。

[0229] 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、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニン層、酸化バナジウムに代表される酸化物層、アモルファスカーボン層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子層等が挙げられる。

[0230] 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、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属層、フッ化カリウムに代

表されるアルカリ金属ハライド層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物層、酸化モリブデンに代表される酸化物層等が挙げられる。本発明の電子注入層はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるがその膜厚は1 nm～10 μmの範囲が好ましい。

[0231] [正孔輸送層]

正孔輸送層は、正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層または複数層設けることができる。

[0232] 正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

[0233] 正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第3級アミン化合物を用いることが好ましい。

[0234] 芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル; N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1' -ビフェニル]-4, 4' -ジアミン(TPD); 2, 2-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N' -テトラ-*p*-トリル-4, 4' -ジアミノビフェニル; 1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン; ビス(4-ジメチルアミノ-

2-メチルフェニル)フェニルメタン;ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)フェニルメタン;N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4,4'-ジアミノビフェニル;N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノジフェニルエーテル;4,4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル;N,N,N-トリ(*p*-トリル)アミン;4-(ジ-*p*-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-*p*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン;4-N,N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン;3-メトキシ-4'-N,N-ジフェニルアミノスチルベンゼン;N-フェニルカルバゾール、さらには米国特許第5,061,569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDATA)等が挙げられる。

[0235] さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、*p*型-Si、*p*型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

[0236] また、特開平11-251067号公報、J. Huang et al., Applied Physics Letters, 80(2002), p. 139に記載されているような所謂、*p*型正孔輸送材料を用いることもできる。本発明においては、より高効率の発光素子が得られることから、これらの材料を用いることが好ましい。

[0237] 正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5~20

0 nmである。この正孔輸送層は、上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

[0238] また、正孔輸送層の材料に不純物をドーピングしてp性を高くすることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)等に記載されたものが挙げられる。

[0239] このように、正孔輸送層のp性を高くすると、より低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

[0240] [電子輸送層]

電子輸送層は、電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層（図示せず）も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層構造または複数層の積層構造として設けることができる。

[0241] 単層構造の電子輸送層、および積層構造の電子輸送層において発光層に隣接する層部分を構成する電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）としては、カソードより注入された電子を発光層に伝達する機能を有していれば良い。このような材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン、アントロン誘導体及びオキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送層の材料として用いることができる。さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

[0242] また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq3）、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-ジブロモ-8-キノリノール）

アルミニウム、トリス（２－メチルー８－キノリノール）アルミニウム、トリス（５－メチルー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またはPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送層の材料として用いることができる。

[0243] その他、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送層の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も例示されるジスチリルピラジン誘導体も電子輸送層の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層の材料として用いることができる。

[0244] 電子輸送層は、上記材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm～5μm程度、好ましくは5～200nmである。電子輸送層は上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

[0245] また、電子輸送層に不純物をドーピングし、n性を高くすることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、同10-270172号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)等に記載されたものが挙げられる。さらに電子輸送層には、カリウムやカリウム化合物などを含有させることが好ましい。カリウム化合物としては、例えば、フッ化カリウム等を用いることができる。このように電子輸送層のn性を高くすると、より低消費電力の素子を作製することができる。

[0246] また電子輸送層の材料（電子輸送性化合物）として、好ましくは、下記一般式（6）で表される化合物を用いることができる。

[0247] (Ar1)_{n1}-Y1…一般式（6）

- [0248] 一般式(6)の式中、 n_1 は1以上の整数を表し、 Y_1 は n_1 が1の場合は置換基を表し、 n_1 が2以上の場合は単なる結合手または n_1 価の連結基を表す。 A_{r1} は後記する一般式(A)で表される基を表し、 n_1 が2以上の場合、複数の A_{r1} は同一でも異なってもよい。ただし、前記一般式(6)で表される化合物は分子内に3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環を少なくとも2つ有する。
- [0249] 一般式(6)において、 Y_1 で表される置換基の例としては、上述した窒素含有層1aを構成する化合物として示した一般式(1)におけるE51～E66、E71～E88で各々表される $-C(R_3)=$ の R_3 で表される置換基と同義である。
- [0250] 一般式(6)において、 Y_1 で表される n_1 価の連結基としては、具体的には、2価の連結基、3価の連結基、4価の連結基等が挙げられる。
- [0251] 一般式(6)において、 Y_1 で表される2価の連結基としては、アルキレン基(例えば、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、プロピレン基、エチルエチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、2,2,4-トリメチルヘキサメチレン基、ヘプタメチレン基、オクタメチレン基、ノナメチレン基、デカメチレン基、ウンデカメチレン基、ドデカメチレン基、シクロヘキシレン基(例えば、1,6-シクロヘキサンジイル基等)、シクロペンチレン基(例えば、1,5-シクロペンタンジイル基など)等)、アルケニレン基(例えば、ビニレン基、プロペニレン基、ブテニレン基、ペンテニレン基、1-メチルビニレン基、1-メチルプロペニレン基、2-メチルプロペニレン基、1-メチルペンテニレン基、3-メチルペンテニレン基、1-エチルビニレン基、1-エチルプロペニレン基、1-エチルブテニレン基、3-エチルブテニレン基等)、アルキニレン基(例えば、エチニレン基、1-プロピニレン基、1-ブチニレン基、1-ペンチニレン基、1-ヘキシニレン基、2-ブチニレン基、2-ペンチニレン基、1-メチルエチニレン基、3-メチル-1-プロピニレン基、3-メチル-1-ブチニレン基等)、アリーレン基(例えば、o-フェニレン基、p-フェニレン基、ナ

フタレンジイル基、アントラセンジイル基、ナフタセンジイル基、ピレンジイル基、ナフチルナフタレンジイル基、ビフェニルジイル基（例えば、[1, 1' -ビフェニル] - 4, 4' -ジイル基、3, 3' -ビフェニルジイル基、3, 6 -ビフェニルジイル基等）、テルフェニルジイル基、クアテルフェニルジイル基、キンクフェニルジイル基、セキシフェニルジイル基、セプチフェニルジイル基、オクチフェニルジイル基、ノビフェニルジイル基、デシフェニルジイル基等）、ヘテロアリーレン基（例えば、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環（モノアザカルボリン環ともいい、カルボリン環を構成する炭素原子のひとつが窒素原子で置き換わった構成の環構成を示す）、トリアゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピラジン環、キノキサリン環、チオフェン環、オキサジアゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、インドール環からなる群から導出される2価の基等）、酸素や硫黄などのカルコゲン原子、3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基等（ここで、3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環としては、好ましくはN、O及びSから選択されたヘテロ原子を、縮合環を構成する元素として含有する芳香族複素縮合環であることが好ましく、具体的には、アクリジン環、ベンゾキノリン環、カルバゾール環、フェナジン環、フェナントリジン環、フェナントロリン環、カルボリン環、サイクラジン環、キンドリン環、テペニジン環、キニンドリン環、トリフェノジチアジン環、トリフェノジオキサジン環、フェナントラジン環、アントラジン環、ペリミジン環、ジアザカルバゾール環（カルボリン環を構成する炭素原子の任意の一つが窒素原子で置き換わったものを表す）、フェナントロリン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、ナフトフラン環、ナフトチオフェン環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフェン環、ナフトジフラン環、ナフトジチオフェン環、アントラフラン環、アントラジフラン環、アントラチオフェン環、アントラジチオフェン環、チアントレン環、フェノキサチイン環、チオファントレン環（ナフトチオフェン環）等）が挙げられる。

- [0252] 一般式(6)において、Y1で表される3価の連結基としては、例えば、エタントリイル基、プロパントリイル基、ブタントリイル基、ペンタントリイル基、ヘキサントリイル基、ヘプタントリイル基、オクタントリイル基、ノナントリイル基、デカントリイル基、ウンデカントリイル基、ドデカントリイル基、シクロヘキサントリイル基、シクロペンタントリイル基、ベンゼントリイル基、ナフタレントリイル基、ピリジントリイル基、カルバゾールトリイル基等が挙げられる。
- [0253] 一般式(6)において、Y1で表される4価の連結基としては、上記の3価の基にさらにひとつ結合基がついたものであり、例えば、プロパンジイリデン基、1,3-プロパンジイル-2-イリデン基、ブタンジイリデン基、ペンタンジイリデン基、ヘキサンジイリデン基、ヘプタンジイリデン基、オクタンジイリデン基、ノナンジイリデン基、デカンジイリデン基、ウンデカンジイリデン基、ドデカンジイリデン基、シクロヘキサンジイリデン基、シクロペンタンジイリデン基、ベンゼンテトライル基、ナフタレンテトライル基、ピリジンテトライル基、カルバゾールテトライル基等が挙げられる。
- [0254] 尚、上記の2価の連結基、3価の連結基、4価の連結基は、各々さらに、一般式(1)におけるE51~E66、E71~E88で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有していてもよい。
- [0255] 一般式(6)で表される化合物の好ましい態様としては、Y1が3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基を表すことが好ましく、当該3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環としては、ジベンゾフラン環またはジベンゾチオフェン環が好ましい。また、n1が2以上であることが好ましい。
- [0256] さらに、一般式(6)で表される化合物は、分子内に上記の3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環を少なくとも2つ有する。
- [0257] また、Y1がn1価の連結基を表す場合、一般式(6)で表される化合物の三重項励起エネルギーを高く保つために、Y1は非共役であることが好ましく、さらに、Tg(ガラス転移点、ガラス転移温度ともいう)を向上させ

る点から、芳香環（芳香族炭化水素環＋芳香族複素環）で構成されていることが好ましい。

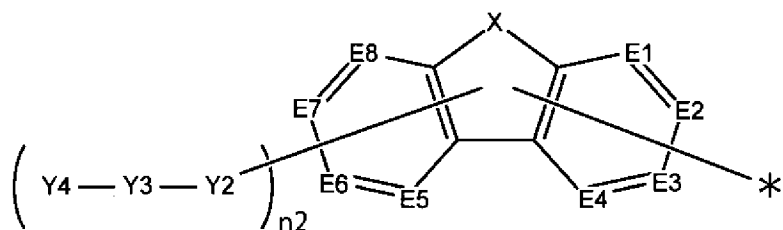
[0258] ここで、非共役とは、連結基が単結合（一重結合ともいう）と二重結合の繰り返しによって表記できないか、または連結基を構成する芳香環同士の間が立体的に切断されている場合を意味する。

[0259] （一般式（A）で表される基）

一般式（6）中における A_{r1} は、下記一般式（A）で表される基を表す。

[0260] [化64]

一般式(A)



[0261] 式中、Xは、 $-N(R)-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ または $-Si(R)(R')$ を表し、E1～E8は、 $-C(R1)=$ または $-N=$ を表し、R、R'及びR1は水素原子、置換基またはY1との連結部位を表す。＊はY1との連結部位を表す。Y2は単なる結合手または2価の連結基を表す。Y3及びY4は、各々5員または6員の芳香族環から導出される基を表し、少なくとも一方は環構成原子として窒素原子を含む芳香族複素環から導出される基を表す。n2は1～4の整数を表す。

[0262] ここで、一般式（A）のXで表される $-N(R)-$ または $-Si(R)(R')$ において、さらに、E1～E8で表される $-C(R1)=$ において、R、R'及びR1で各々表される置換基は、一般式（1）におけるE51～E66、E71～E88で各々表される $-C(R3)=$ のR3で表される置換基と同義である。

[0263] また、一般式（A）において、Y2で表される2価の連結基としては、一般式（6）において、Y1で表される2価の連結基と同義である。

[0264] さらに、一般式 (A) において、Y 3 及び Y 4 で各々表される 5 員または 6 員の芳香族環から導出される基の形成に用いられる 5 員または 6 員の芳香族環としては、ベンゼン環、オキサゾール環、チオフェン環、フラン環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ジアジン環、トリアジン環、イミダゾール環、イソオキサゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

[0265] さらに、Y 3 及び Y 4 で各々表される 5 員または 6 員の芳香族環から導出される基の少なくとも一方は、環構成原子として窒素原子を含む芳香族複素環から導出される基を表すが、当該環構成原子として窒素原子を含む芳香族複素環としては、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ジアジン環、トリアジン環、イミダゾール環、イソオキサゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

[0266] (Y 3 で表される基の好ましい態様)

一般式 (A) において、Y 3 で表される基としては、上記 6 員の芳香族環から導出される基であることが好ましく、さらに好ましくは、ベンゼン環から導出される基である。

[0267] (Y 4 で表される基の好ましい態様)

一般式 (A) において、Y 4 で表される基としては、上記 6 員の芳香族環から導出される基であることが好ましく、さらに好ましくは、窒素原子を環構成原子として含む芳香族複素環から導出される基であり、特に好ましくは、Y 4 がピリジン環から導出される基であることである。

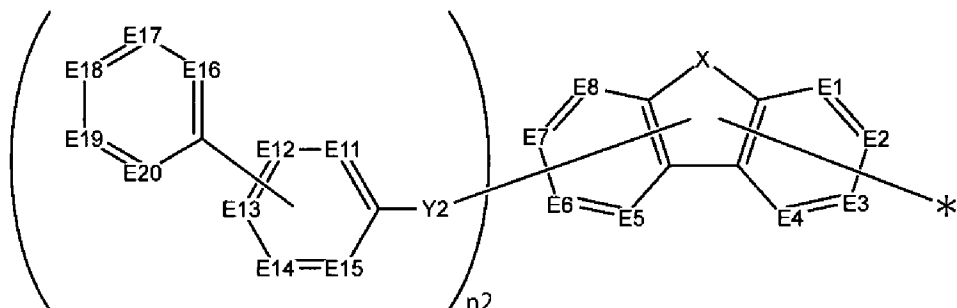
[0268] (一般式 (A) で表される基の好ましい態様)

一般式 (A) で表される基の好ましい態様としては、下記一般式 (A-1)、(A-2)、(A-3)、または (A-4) のいずれかで表される基が挙げられる。

[0269]

[化65]

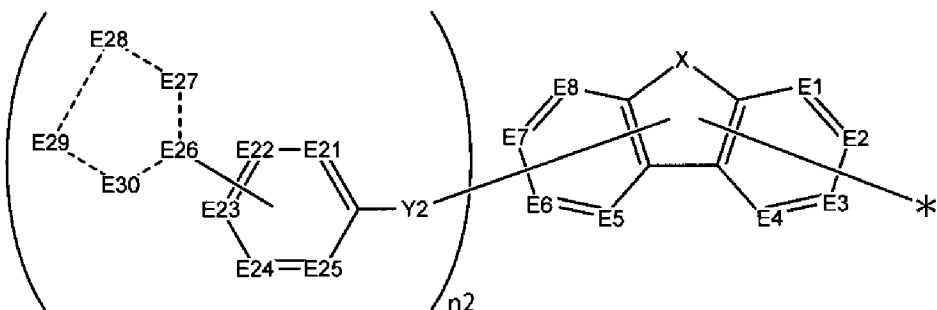
一般式(A-1)



[0270] 上記一般式(A-1)の式中、Xは-N(R)-、-O-、-S-または-Si(R)(R')-を表し、E1~E8は-C(R1)=または-N=を表し、R、R'及びR1は水素原子、置換基またはY1との連結部位を表す。Y2は単なる結合手または2価の連結基を表す。E11~E20は、-C(R2)=または-N=を表し、少なくとも1つは-N=を表す。R2は、水素原子、置換基または連結部位を表す。但し、E11、E12の少なくとも1つは-C(R2)=を表し、R2は連結部位を表す。n2は1~4の整数を表す。*は、上記一般式(6)のY1との連結部位を表す。

[0271] [化66]

一般式(A-2)

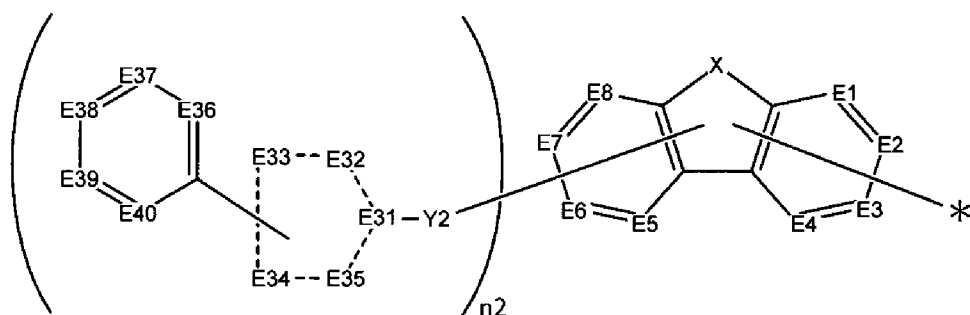


[0272] 上記一般式(A-2)の式中、Xは-N(R)-、-O-、-S-または-Si(R)(R')-を表し、E1~E8は-C(R1)=または-N=を表し、R、R'及びR1は水素原子、置換基またはY1との連結部位を表す。Y2は単なる結合手または2価の連結基を表す。E21~E25は-C

(R 2) = または $-N=$ を表し、E 2 6 ~ E 3 0 は $-C(R 2)=$ 、 $-N=$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ または $-Si(R 3)(R 4)-$ を表し、E 2 1 ~ E 3 0 の少なくとも 1 つは $-N=$ を表す。R 2 は、水素原子、置換基または連結部位を表し、R 3 及び R 4 は水素原子または置換基を表す。但し、E 2 1 または E 2 2 の少なくとも 1 つは $-C(R 2)=$ を表し、R 2 は連結部位を表す。 $n 2$ は 1 ~ 4 の整数を表す。* は、上記一般式 (6) の Y 1 との連結部位を表す。

[0273] [化67]

一般式 (A-3)

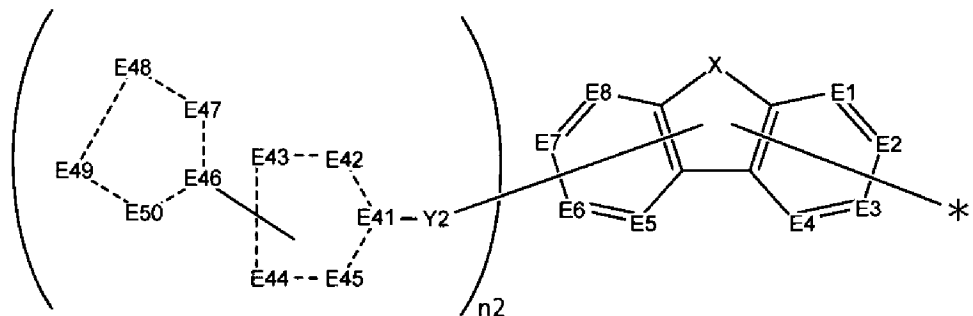


[0274] 上記一般式 (A-3) の式中、X は $-N(R)-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ または $-Si(R)(R')-$ を表し、E 1 ~ E 8 は $-C(R 1)=$ または $-N=$ を表し、R、R' 及び R 1 は水素原子、置換基または Y 1 との連結部位を表す。Y 2 は単なる結合手または 2 価の連結基を表す。E 3 1 ~ E 3 5 は $-C(R 2)=$ 、 $-N=$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ または $-Si(R 3)(R 4)-$ を表し、E 3 6 ~ E 4 0 は $-C(R 2)=$ または $-N=$ を表し、E 3 1 ~ E 4 0 の少なくとも 1 つは $-N=$ を表す。R 2 は、水素原子、置換基または連結部位を表し、R 3 及び R 4 は水素原子または置換基を表す。但し、E 3 2 または E 3 3 の少なくとも 1 つは $-C(R 2)=$ で表され、R 2 は連結部位を表す。 $n 2$ は 1 ~ 4 の整数を表す。* は、上記一般式 (6) の Y 1 との連結部位を表す。

[0275]

[化68]

一般式 (A-4)



[0276] 上記一般式 (A-4) の式中、X は $-N(R)-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ または $-Si(R)(R')-$ を表し、E1～E8 は $-C(R1)=$ または $-N=$ を表し、R、R' 及び R1 は水素原子、置換基または Y1 との連結部位を表す。Y2 は単なる結合手または 2 価の連結基を表す。E41～E50 は $-C(R2)=$ 、 $-N=$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ または $-Si(R3)(R4)-$ を表し、少なくとも 1 つは $-N=$ を表す。R2 は、水素原子、置換基または連結部位を表し、R3 及び R4 は水素原子または置換基を表す。但し、E42 または E43 の少なくとも 1 つは $-C(R2)=$ で表され、R2 は連結部位を表す。n2 は 1～4 の整数を表す。* は、上記一般式 (6) の Y1 との連結部位を表す。

[0277] 以下、一般式 (A-1)～(A-4) のいずれかで表される基について説明する。

[0278] 一般式 (A-1)～(A-4) で表される基のいずれかの X で表される $-N(R)-$ または $-Si(R)(R')-$ において、さらに、E1～E8 で表される $-C(R1)=$ において、R、R' 及び R1 で各々表される置換基は、一般式 (1) における E51～E66、E71～E88 で各々表される $-C(R3)=$ の R3 で表される置換基と同義である。

[0279] 一般式 (A-1)～(A-4) で表される基のいずれかにおいて、Y2 で表される 2 価の連結基としては、一般式 (6) において、Y1 で表される 2 価の連結基と同義である。

[0280] 一般式 (A-1) の E 1 1 ~ E 2 0、一般式 (A-2) の E 2 1 ~ E 3 0、一般式 (A-3) の E 3 1 ~ E 4 0、一般式 (A-4) の E 4 1 ~ E 5 0 で、各々表される -C (R 2) = の R 2 で表される置換基は、一般式 (1) における E 5 1 ~ E 6 6、E 7 1 ~ E 8 8 で各々表される -C (R 3) = の R 3 で表される置換基と同義である。

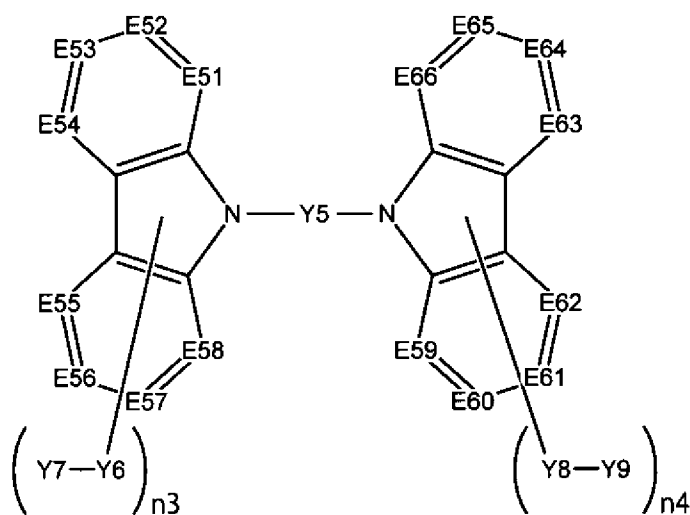
[0281] 次に、本発明に係る一般式 (6) で表される化合物のさらに好ましい態様について説明する。

[0282] (一般式 (7) で表される化合物)

本発明では、上記一般式 (6) で表される化合物の中でも、下記一般式 (7) で表される化合物が好ましい。この一般式 (7) は、窒素含有層 1 a を構成する化合物として示した一般式 (1) を含む。以下、一般式 (7) で表される化合物について説明する。

[0283] [化69]

一般式 (7)



[0284] 上記一般式 (7) の式中、Y 5 は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基またはそれらの組み合わせからなる 2 価の連結基を表す。E 5 1 ~ E 6 6 は、各々 -C (R 3) = または -N = を表し、R 3 は水素原子または置換基を表す。Y 6 ~ Y 9 は、各々芳香族炭化水素環から導出される基または芳香族複素環から導出される基を表し、Y 6 または Y 7 の少なくとも一方、及び Y 8

またはY 9の少なくとも一方は、N原子を含む芳香族複素環から導出される基を表す。n 3及びn 4は0～4の整数を表すが、n 3 + n 4は2以上の整数である。

[0285] 一般式(7)におけるY 5は、一般式(1)におけるY 5と同義である。

[0286] 一般式(7)におけるE 5 1～E 6 6は、一般式(1)におけるE 5 1～E 6 6と同義である。

[0287] 一般式(7)において、E 5 1～E 6 6で各々表される基としては、E 5 1～E 5 8のうちの6つ以上及びE 5 9～E 6 6のうちの6つ以上が、各々-C(R 3)=で表されることが好ましい。

[0288] 一般式(7)において、Y 6～Y 9は、各々芳香族炭化水素環から導出される基の形成に用いられる芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、o-テルフェニル環、m-テルフェニル環、p-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。

[0289] さらに、前記芳香族炭化水素環は、一般式(1)におけるE 5 1～E 6 6で各々表される-C(R 3)=のR 3で表される置換基を有してもよい。

[0290] 一般式(7)において、Y 6～Y 9は、各々芳香族複素環から導出される基の形成に用いられる芳香族複素環としては、例えば、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、シンノリン環、キノリン環、イソキノリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環(カルボリン環を構成する炭素

原子の一つがさらに窒素原子で置換されている環を示す)等が挙げられる。

[0291] さらに、前記芳香族炭化水素環は、一般式(1)におけるE51～E66で各々表される-C(R3)=のR3で表される置換基を有してもよい。

[0292] 一般式(7)において、Y6またはY7の少なくとも一方、及びY8またはY9の少なくとも一方で表されるN原子を含む芳香族複素環から導出される基の形成に用いられるN原子を含む芳香族複素環としては、例えば、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、シンノリン環、キノリン環、イソキノリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環(カルボリン環を構成する炭素原子の一つがさらに窒素原子で置換されている環を示す)等が挙げられる。

[0293] 一般式(7)において、Y7、Y9で表される基としては、各々ピリジン環から導出される基を表すことが好ましい。

[0294] また、一般式(7)において、Y6及びY8で表される基としては、各々ベンゼン環から導出される基を表すことが好ましい。

[0295] 以上説明したような一般式(7)で表される化合物の中でもさらに好ましい態様として、窒素含有層1aを構成する化合物として示した一般式(1)で表される化合物が例示される。

[0296] 以上のような一般式(6)、(7)、または一般式(1)で表される化合物の具体例として、上記で例示した化合物(1～118)が示される。

[0297] [阻止層：正孔阻止層、電子阻止層]

阻止層は、上記の如く有機化合物薄膜の基本構成層の他に、必要に応じて設けられるものである。例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の237頁等に記載されてい

る正孔阻止（ホールブロック）層がある。

[0298] 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。正孔阻止層は、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、後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。正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられていることが好ましい。

[0299] 一方、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。電子阻止層は、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、後述する正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。本発明に係る阻止層の膜厚としては、好ましくは3～100nmであり、さらに好ましくは5～30nmである。

[0300] <その他の構成要素>

以上のような有機電界発光素子EL-1は、光取り出し側となる透明電極（例えばここでは第1電極5）の低抵抗化を図ることを目的とし、第1電極5に接して下記の補助電極が設けられていても良い。また有機材料等を用いて構成された発光ユニット3-1、3-2の劣化を防止することを目的として、基板11上において下記の封止材で封止されている。さらに、基板11との間に有機電界発光素子EL-1および封止材を挟んで、下記の保護膜もしくは保護板を設けても良い。

[0301] [補助電極]

補助電極は、光透過性を有する電極（例えばここでは第1電極5）の抵抗を下げる目的で設けるものであって、第1電極5に接して設けられる。補助電極を形成する材料は、金、白金、銀、銅、アルミニウム等の抵抗が低い金属が好ましい。これらの金属は光透過性が低いため、光取り出し面からの発光光hの取り出しの影響のない範囲でパターン形成される。このような補助

電極の形成方法としては、蒸着法、スパッタリング法、印刷法、インクジェット法、エアロゾルジェット法などが挙げられる。補助電極の線幅は、光を取り出す開口率の観点から $50\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、補助電極の厚さは、導電性の観点から 1μ 以上であることが好ましい。

[0302] [封止材]

封止材は、有機電界発光素子EL-1を覆うものであって、板状（フィルム状）の封止部材であって接着剤によって基板11側に固定されるものであっても良く、封止膜であっても良い。ただし、第1電極5および第2電極7の端子部分は、基板11上において発光ユニット3-1、3-2によって互いに絶縁性を保った状態で封止材から露出させた状態で設けられていることとする。

[0303] 板状（フィルム状）の封止材としては、具体的には、ガラス基板、ポリマー基板、金属材料基板で構成されたものが挙げられ、これらの基板材料をさらに薄型のフィルム状にして用いても良い。

[0304] ガラス基板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー基板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。さらに金属材料基板としては、さらに金属材料基板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。

[0305] なかでも、素子を薄膜化できるということから、封止材としてポリマー基板または金属材料基板を薄型のフィルム状にしたものを好ましく使用することができる。ただし、有機電界発光素子EL-1が、基板11とは逆の第2電極7側からも光を取り出すものである場合、この封止材としては光透過性を有するガラス基板またはポリマー基板が用いられる。

- [0306] フィルム状としたポリマー基板は、J I S K 7 1 2 6 - 1 9 8 7 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、J I S K 7 1 2 9 - 1 9 9 2 に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度 ($25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 (90 ± 2) %RH) が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のものであることが好ましい。
- [0307] また以上のような基板材料は、凹板状に加工して封止材として用いても良い。この場合、上述した基板部材に対してサンドブラスト加工、化学エッチング加工等の加工が施され、凹状が形成される。
- [0308] またこのような板状の封止材を基板 11 側に固定するための接着剤は、封止材と基板 11 との間に挟持された有機電界発光素子 EL-1 を封止するためのシール剤として用いられる。このような接着剤は、具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化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。
- [0309] またこのような接着剤としては、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。
- [0310] 尚、有機電界発光素子 EL-1 を構成する有機材料は、熱処理により劣化する場合がある。このため、接着剤は、室温から 80°C までに接着硬化できるものが好ましい。また、接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。
- [0311] 封止材と基板 11 との接着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。
- [0312] また板状の封止材と基板 11 と接着剤との間に隙間が形成される場合、この隙間には、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。

- [0313] 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、沃化バリウム、沃化マグネシウム等）、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。
- [0314] 一方、封止材として封止膜を用いる場合、有機電界発光素子E L-1における発光ユニット3-1、3-2を完全に覆い、かつ有機電界発光素子E L-1における第1電極5および第2電極7の端子部分を露出させる状態で、基板11上に封止膜が設けられる。
- [0315] このような封止膜は、無機材料や有機材料を用いて構成される。特に、水分や酸素等、有機電界発光素子E L-1における発光ユニット3-1、3-2の劣化をもたらす物質の浸入を抑制する機能を有する材料で構成されることとする。このような材料として、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等の無機材料が用いられる。さらに封止膜の脆弱性を改良するために、これら無機材料からなる膜と共に、有機材料からなる膜を用いて積層構造としても良い。
- [0316] 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。
- [0317] 尚、上述した封止材は、さらに電極を備えていても良く、有機電界発光素子E L-1の第1電極5および第2電極7の端子部分と、この電極とを導通させるように構成されていても良い。

[0318] [保護膜、保護板]

保護膜もしくは保護板は、有機電界発光素子 EL-1 を機械的に保護するためのものであり、特に封止材が封止膜である場合には、有機電界発光素子 EL-1 に対する機械的な保護が十分ではないため、このような保護膜もしくは保護板を設けることが好ましい。

[0319] 以上のような保護膜もしくは保護板は、ガラス板、ポリマー板、これよりも薄型のポリマーフィルム、金属板、これよりも薄型の金属フィルム、またはポリマー材料膜や金属材料膜が適用される。このうち特に、軽量かつ薄膜化ということからポリマーフィルムを用いることが好ましい。

[0320] <有機電界発光素子 EL-1 の作製方法>

先ず基板 11 上に、蒸着法やスパッタ法などの適宜の成膜法によって、光透過性の第 1 電極 5 を陽極として形成する。また、第 1 電極 5 の形成前後には、必要に応じて補助電極のパターン形成を行う。

[0321] 次にこの上に、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層の順に成膜し、発光ユニット 3-1 を形成する。これらの各層の成膜は、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、スパッタ法、印刷法等があるが、均質な膜が得られやすく、且つピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法またはスピコート法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる成膜法を適用してもよい。これらの各層の成膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は使用する化合物の種類等により異なるが、一般にボート加熱温度 $50^{\circ}\text{C} \sim 450^{\circ}\text{C}$ 、真空度 $10^{-6}\text{Pa} \sim 10^{-2}\text{Pa}$ 、蒸着速度 $0.01\text{nm}/\text{秒} \sim 50\text{nm}/\text{秒}$ 、基板温度 $-50^{\circ}\text{C} \sim 300^{\circ}\text{C}$ 、膜厚 $0.1\mu\text{m} \sim 5\mu\text{m}$ の範囲で、各条件を適宜選択することが望ましい。

[0322] 次いで、窒素原子を含んだ化合物からなる窒素含有層 1a を、 $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10\text{nm} \sim 100\text{nm}$ の膜厚になるように形成する。その後、銀（または銀を主成分とした合金）からなる透明導電層 1b を、 $4\text{nm} \sim 12\text{nm}$ の膜厚になるように形成する。これらの窒素含有層 1a および透明導電層 1b の形成は、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着

法、スパッタ法、印刷法等があるが、均質な膜が得られやすく、且つピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法が特に好ましい。

[0323] その後さらに、透明導電層 1 b 上に、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層の順に成膜し、発光ユニット 3-2 を形成する。これらの各層の成膜は、発光ユニット 3-1 と同様に行われる。

[0324] 以上の後、発光ユニット 3-2 上に、蒸着法やスパッタ法などの適宜の成膜法によって、第 2 電極 7 を陰極として形成する。

[0325] これにより、有機電界発光素子 E L-1 が得られる。またその後には、有機電界発光素子 E L-1 における第 1 電極 5 および第 2 電極 7 の端子部分を露出させた状態で、少なくとも発光ユニット 3-1, 3-2 を覆う封止材（図示要略）を設ける。この際、接着剤を用いて、封止材を基板 1 1 側に接着し、これらの封止材－基板間に有機電界発光素子 E L-1 を封止する。

[0326] 以上により、基板 1 1 上に所望の有機電界発光素子 E L-1 が得られる。このような有機電界発光素子 E L-1 の作製においては、一回の真空引きで一貫して発光ユニット 3-1 から第 2 電極 7 まで作製するのが好ましいが、途中で真空雰囲気から基板 1 1 を取り出して異なる成膜法を施しても構わない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

[0327] このようにして得られた有機電界発光素子 E L-1 の駆動に際し、駆動電圧 V として直流電圧を印加する場合には、陽極である第 1 電極 5 を + の極性とし、陰極である第 2 電極 7 を - の極性として、電圧 2 V 以上 40 V 以下程度を印加すると発光が観測できる。また第 1 電極 5 および第 2 電極 7 に対して交流電圧を印加してもよい。尚、印加する交流の波形は任意でよい。

[0328] <有機電界発光素子 E L-1 の効果>

以上説明した有機電界発光素子 E L-1 は、先に説明した導電性と光透過性とを兼ね備えた透明導電層 1 b を、発光ユニット 3-1, 3-2 間に挟持させた構成である。このため、発光ユニット 3-1, 3-2 に対して透明導電層 1 b から十分に電荷を注入して発光効率を確保しつつ、各発光ユニット 3-1, 3-2 で発生させた発光光 h の透明導電層 1 b における吸収を抑えることにより

、発光効率の向上を図ることが可能になる。またこれにより、所定輝度を得るための駆動電圧の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

[0329] ≪ 3. 第1実施形態の変形例1 ≫

図3は、上述した第1実施形態の有機電界発光素子E L-1の変形例1を説明するための断面模式図である。図3に示すように、有機電界発光素子E L-1'は、第1電極5および第2電極7と共に、透明導電層1bにも駆動電圧を印加するようにした構成であり、積層構成については第1実施形態と同様である。

[0330] この場合、有機電界発光素子E L-1の駆動に際し、第1電極5－透明導電層1b間に印加する駆動電圧V1、透明導電層1b－第2電極7間に印加する駆動電圧V2として、直流電圧を印加する場合には、陽極である第1電極5を＋の極性とし、陰極である第2電極7を－の極性として、これらの間に電圧2V以上40V以下程度を印加し、さらに透明導電層1bに対しては陽極と陰極との中間電圧を印加する。

[0331] このような構成の変形例1の有機電界発光素子E L-1'では、透明導電層1bに印加する中間電圧を調整することにより、発光ユニット3-1、3-2での発光割合を任意に変化させることが可能である。発光ユニット3-1、3-2のそれぞれが、異なる色の発光光hが得られるように構成されている場合、このような発光割合の制御によってカラー発光の制御も可能である。

[0332] ≪ 4. 第1実施形態の変形例2 ≫

図4は、上述した第1実施形態の有機電界発光素子E L-1の変形例2を説明するための断面模式図である。図4に示すように、有機電界発光素子E L-1''は、第1電極5および第2電極7を同一の極性とし、透明導電層1bに逆極性の駆動電圧を印加するようにした構成であり、2つの発光ユニット3-1、3-2の一方を逆積みとした構成である。他の構成については第1実施形態と同様である。

[0333] ここでは一例として、第1電極5および第2電極7を陽極として用いることとする。この場合、透明導電層1bが陰極として用いられることになる。

このため第2電極7側の発光ユニット3-2'は、基板11側から順に「電子注入層／電子輸送層／発光層／正孔輸送層／正孔注入層」を積層した逆積み構成となっている。このような構成であっても、窒素含有層1aと透明導電層1bとは、基板11側から窒素含有層1a、透明導電層1bとなっていることとする。

[0334] このような有機電界発光素子EL-1"の駆動は、第1実施形態と同様である。すなわち、第1電極5－透明導電層1b間に印加する駆動電圧V1、透明導電層1b－第2電極7間に印加する駆動電圧V2として、直流電圧を印加する場合には、陽極である第1電極5および第2電極7を+の極性とし、陰極である透明導電層1bを-の極性として、これらの間に電圧2V以上40V以下程度を印加すると発光が観測できる。また第1電極5および第2電極7と、透明導電層1bとに対して交流電圧を印加してもよい。尚、印加する交流の波形は任意でよい。また、発光ユニット3-2'および発光ユニット3-1を構成する各層の積層順が逆である場合、第1電極5および第2電極7が陰極となるため、これらの電極に-の極性とし、透明導電層1bが陽極となるため+極性とすれば良い。

[0335] このような構成の変形例2の有機電界発光素子EL-1"では、図2を用いて説明した第1実施形態の有機電界発光素子と比較して、所定輝度を得るために必要な電流密度を低くすることができるため、駆動電圧は高いものの、発光寿命の向上を図ることが可能になる。

[0336] << 5. 第2実施形態 >>

(発光ユニット間の導電層および第2電極を透明導電層とした例)

図5は、上述した透明導電層1bを用いたタンデム構造の有機電界発光素子の第2実施形態を示す断面構成図である。以下にこの図に基づき、第2実施形態の有機電界発光素子EL-2の特徴的な構成を説明する。尚、第1実施形態と同様の構成要素についての重複する詳細な説明は省略する。

[0337] 図5に示す有機電界発光素子EL-2が、図2を用いて説明した第1実施形態の有機電界発光素子と異なるところは、基板11と逆側に設けた第2電極

7として、透明導電層1 b-2を用いたところにある。またこの透明導電層1 b-2には、窒素含有層1 a-2が隣接して設けられている。他の構成は第1実施形態と同様である。

[0338] つまり有機電界発光素子EL-2においては、第1実施形態と同様にして、発光ユニット3-1、3-2間に窒素含有層1 a-1と透明導電層1 b-1とが設けられており、さらに発光ユニット3-2上にも、窒素含有層1 a-2と透明導電層1 b-2とがこの順に配置されている。発光ユニット3-1、3-2間の窒素含有層1 a-1および透明導電層1 b-1、さらに発光ユニット3-2上の窒素含有層1 a-2および透明導電層1 b-2は、第1実施形態で説明した窒素含有層および透明導電層と同様のものである。

[0339] したがって、発光ユニット3-2に隣接して配置された窒素含有層1 a-2は、発光ユニット3-2の一部を構成する層であるともみなされる。このため、第2電極7として用いられる透明導電層1 b-2が陰極であれば、これに隣接する窒素含有層1 a-2は、電子注入性または電子輸送性を有することが好ましい。逆に、第2電極7として用いられる透明導電層1 b-2が陽極であれば、これに隣接する窒素含有層1 a-2は、正孔注入性または正孔輸送性を有することが好ましい。

[0340] また以上のように第2電極7を透明導電層1 b-2で構成した有機電界発光素子EL-2は、基板11と逆側からも発光光hを取り出す両面発光型となるか、または第1電極5を例えば反射材料のような光透過性のない電極とした場合にはトップエミッション型となる。

[0341] 以上のような構成の有機電界発光素子EL-2の作製方法は、第1実施形態と同様であり、基板11側の層から順に各層をパターン成膜すれば良い。

[0342] <有機電界発光素子EL-2効果>

以上説明した有機電界発光素子EL-2は、先に説明した導電性と光透過性とを兼ね備えた透明導電層1 b-1、1 b-2を、発光ユニット3-1、3-2間に挟持させると共に、第2電極7としても用いた構成である。このため、発光ユニット3-1、3-2に対して2つの透明導電層1 b-1、1 b-2から十分に電

荷を注入して発光効率を確保しつつ、各発光ユニット 3-1, 3-2で発生させた発光光 h の透明導電層 1 b-1, 1 b-2においての吸収を抑えて光取り出し効率の向上を図ることが可能になる。またこれにより、所定輝度を得るための電流密度の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

[0343] <変形例 1 との組み合わせ>

また本第 2 実施形態の構成も、第 1 実施形態の変形例 1 の構成と組み合わせることができる。この場合、第 1 電極 5 - 透明導電層 1 b-1間に駆動電圧 V 1 を印加し、さらに透明導電層 1 b-1 - 第 2 電極 7 (透明導電層 1 b-2) 間に駆動電圧 V 2 を印加する構成とする。これにより、第 1 実施形態の変形例 1 と同様の効果を得ることができる。

[0344] <変形例 2 との組み合わせ>

さらに本第 2 実施形態の構成は、第 1 実施形態の変形例 2 の構成と組み合わせることができる。この場合、発光ユニット 3-1と、発光ユニット 3-2とで、これらを構成する層の積層順を逆にする。このような構成であっても、各発光ユニット 3-1, 3-2間には、基板 1 1 側から順に窒素含有層 1 a-1、透明導電層 1 b-1を配置し、発光ユニット 3-2上にも基板 1 1 側から順に窒素含有層 1 a-2、透明導電層 1 b-2を配置する。

[0345] またこの場合、第 1 電極 5、透明導電層 1 b-1、および第 2 電極 7 (透明導電層 1 b-2) には、第 1 実施形態の変形例 2 と同様に駆動電圧 V 1, V 2 を印加する。

[0346] このように第 2 実施形態に変形例 2 を組み合わせた構成であっても、第 1 実施形態の変形例 2 と同様の効果を得ることができる。

[0347] << 6. 第 3 実施形態 >>

(発光ユニット間の導電層および第 1 電極を透明導電層とした例)

図 6 は、上述した透明導電層 1 b を用いたタンデム構造の有機電界発光素子の第 3 実施形態を示す断面構成図である。以下にこの図に基づき、第 3 実施形態の有機電界発光素子 E L-3 の特徴的な構成を説明する。尚、第 1 実施形態と同様の構成要素についての重複する詳細な説明は省略する。

[0348] 図6に示す有機電界発光素子EL-3が、図2を用いて説明した第1実施形態の有機電界発光素子と異なるところは、基板11側に設けた第1電極5として、透明導電層1b-1を用いたところにある。またこの透明導電層1b-1には、窒素含有層1a-1が隣接して設けられている。他の構成は第1実施形態と同様である。

[0349] つまり有機電界発光素子EL-3においては、基板11に接して窒素含有層1a-1と透明導電層1b-1とがこの順に配置され、さらに第1実施形態と同様にして、発光ユニット3-1、3-2間に窒素含有層1a-2と透明導電層1b-2とが設けられている。基板11に隣接して設けた窒素含有層1a-1および透明導電層1b-1、さらに発光ユニット3-1、3-2間の窒素含有層1a-2および透明導電層1b-2は、第1実施形態で説明した窒素含有層および透明導電層と同様のものである。

[0350] 以上のような構成の有機電界発光素子EL-3の作製方法は、第1実施形態と同様であり、基板11側の層から順に各層をパターン成膜すれば良い。

[0351] <有機電界発光素子EL-3効果>

以上説明した有機電界発光素子EL-3は、先に説明した導電性と光透過性とを兼ね備えた透明導電層1b-1、1b-2を、発光ユニット3-1、3-2間に挟持させると共に、第1電極5としても用いた構成である。このため、発光ユニット3-1、3-2に対して2つの透明導電層1b-1、1b-2から十分に電荷を注入して発光効率を確保しつつ、各発光ユニット3-1、3-2で発生させた発光光hの透明導電層1bにおいての吸収を抑えて光取り出し効率の向上を図ることが可能になる。またこれにより、所定輝度を得るための電流密度の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

[0352] <変形例1との組み合わせ>

また本第3実施形態の構成も、第1実施形態の変形例1の構成と組み合わせることができる。この場合、透明導電層1b-1で構成された第1電極5—透明導電層1b-2間に駆動電圧V1を印加し、さらに透明導電層1b-2—第2電極7間に駆動電圧V2を印加する構成とする。これにより、第1実施形

態の変形例 1 と同様の効果を得ることができる。

[0353] <変形例 2 との組み合わせ>

さらに本第 3 実施形態の構成は、第 1 実施形態の変形例 2 の構成と組み合わせることができる。この場合、発光ユニット 3-1 と、発光ユニット 3-2 とで、これらを構成する層の積層順を逆にすることができる。このような構成であっても、基板 1 1 上には、基板 1 1 側から順に窒素含有層 1 a-1、透明導電層 1 b-1 を配置し、各発光ユニット 3-1、3-2 間にも、基板 1 1 側から順に窒素含有層 1 a-2、透明導電層 1 b-2 を配置する。

[0354] またこの場合、第 1 電極 5（透明導電層 1 b-1）、透明導電層 1 b-2、および第 2 電極 7 には、第 1 実施形態の変形例 2 と同様に駆動電圧 V_1 、 V_2 を印加する。

[0355] このように第 2 実施形態に変形例 2 を組み合わせた構成であっても、第 1 実施形態の変形例 2 と同様の効果を得ることができる。

[0356] << 7. 第 4 実施形態 >>

（発光ユニット間の導電層および 2 つの電極を透明導電層とした例）

図 7 は、上述した透明導電層 1 b を用いたタンデム構造の有機電界発光素子の第 4 実施形態を示す断面構成図である。以下にこの図に基づき、第 4 実施形態の有機電界発光素子 EL-4 の特徴的な構成を説明する。尚、第 1 実施形態と同様の構成要素についての重複する詳細な説明は省略する。

[0357] 図 7 に示す有機電界発光素子 EL-4 が、図 2 を用いて説明した第 1 実施形態の有機電界発光素子と異なるところは、第 1 電極 5 および第 2 電極 7 としても、透明導電層 1 b-1、1 b-3 を用いたところにある。またこれらの透明導電層 1 b-1、1 b-3 には、窒素含有層 1 a-1、1 a-3 が隣接して設けられている。他の構成は第 1 実施形態と同様である。

[0358] つまり有機電界発光素子 EL-4 においては、第 1 実施形態と同様にして、発光ユニット 3-1、3-2 間に窒素含有層 1 a-2 と透明導電層 1 b-2 とが設けられている。さらに基板 1 1 と発光ユニット 3-1 間にも基板 1 1 側から順に窒素含有層 1 a-1 と透明導電層 1 b-1 とが配置されている。さらに発光ユニ

ット3-2上にも基板11側から順に窒素含有層1a-3と透明導電層1b-3とが配置されている。これらの窒素含有層1a-1～1a-3、および透明導電層1b-1～1b-3は、先に説明した構成のものである。

[0359] したがって、発光ユニット3-2に隣接して配置された窒素含有層1a-3は、発光ユニット3-2の一部を構成する層であるともみなされる。このため、第2電極7として用いられる透明導電層1b-3が陰極であれば、これに隣接する窒素含有層1a-3は、電子注入性または電子輸送性を有することが好ましい。逆に、第2電極7として用いられる透明導電層1b-3が陽極であれば、これに隣接する窒素含有層1a-3は、正孔注入性または正孔輸送性を有することが好ましい。

[0360] また以上のように第1電極5および第2電極7を透明導電層1bで構成した有機電界発光素子EL-4は、基板11と逆側からも発光光hを取り出す両面発光型となる。

[0361] 以上のような構成の有機電界発光素子EL-4の作製方法は、第1実施形態と同様であり、基板11側の層から順に各層をパターン成膜すれば良い。

[0362] <有機電界発光素子EL-4効果>

以上説明した有機電界発光素子EL-4は、先に説明した導電性と光透過性とを兼ね備えた透明導電層1b-1～1b-3を、発光ユニット3-1、3-2間に挟持させると共に、第1電極5および第2電極7としても用いた構成である。このため、発光ユニット3-1、3-2に対して3つの透明導電層1b-1～1b-3から十分に電荷を注入して発光効率を確保しつつ、各発光ユニット3-1、3-2で発生させた発光光hの透明導電層1b-1～1b-3における吸収を抑えて光取り出し効率の向上を図ることが可能になる。またこれにより、所定輝度を得るための電流密度の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

[0363] <変形例1との組み合わせ>

また本第4実施形態の構成も、第1実施形態の変形例1の構成と組み合わせることができる。この場合、第1電極5（透明導電層1b-1）－透明導電

層 1 b-2間に駆動電圧 V_1 を印加し、さらに透明導電層 1 b-2—第 2 電極 7 (透明導電層 1 b-3) 間に駆動電圧 V_2 を印加する構成とする。これにより、第 1 実施形態の変形例 1 と同様の効果を得ることができる。

[0364] <変形例 2 との組み合わせ>

さらに本第 4 実施形態の構成は、第 1 実施形態の変形例 2 の構成と組み合わせることができる。この場合、発光ユニット 3-1 と、発光ユニット 3-2 とで、これらを構成する層の積層順を逆にすることができる。このような構成であっても、各透明導電層 1 b-1 ~ 1 b-3 の基板 1 1 側に隣接させて各窒素含有層 1 a-1 ~ 1 a-3 を配置する。

[0365] またこの場合、第 1 電極 5 (透明導電層 1 b-1)、透明導電層 1 b-2、および第 2 電極 7 (透明導電層 1 b-3) には、第 1 実施形態の変形例 2 と同様に駆動電圧 V_1 、 V_2 を印加する。

[0366] このように第 4 実施形態に変形例 2 を組み合わせた構成であっても、第 1 実施形態の変形例 2 と同様の効果を得ることができる。

[0367] << 8. 第 5 実施形態 >>

(3 つ以上の発光ユニット間に透明導電層を設けた例)

図 8 は、上述した透明導電層 1 b を用いたタンデム構造の有機電界発光素子の第 5 実施形態を示す断面構成図である。以下にこの図に基づき第 5 実施形態の有機電界発光素子 EL-5 の特徴的な構成を説明する。尚、第 1 実施形態と同様の構成要素についての重複する詳細な説明は省略する。

[0368] 図 8 に示す有機電界発光素子 EL-5 が、図 2 を用いて説明した第 1 実施形態の有機電界発光素子と異なるところは、3 つ以上 (ここでは 3 つ) の発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3 が積層して設けられ、これらの間にそれぞれ窒素含有層 1 a-1, 1 a-2、および透明導電層 1 b-1, 1 b-2 が配置されているところにある。他の構成は同様である。

[0369] すなわち、各発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3 の構成は、第 1 実施形態で説明したと同様であり、全体的な層構造が限定されることはなく、各発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3 は、それぞれが個別に一般的な層構造を有していて良い。

また各発光ユニット3-1, 3-2, 3-3は、同一色の発光光hが得られるように構成されていても良く、異なる色の発光光hが得られるように構成されていても良い。この場合、各発光ユニット3-1, 3-2, 3-3が、それぞれ赤(R)、緑(G)、青(B)の発光光hを得られる構成として白色発光としても良い。

[0370] 窒素含有層1 a-1, 1 a-2および透明導電層1 b-1, 1 b-2は先に説明した構成のものであり、ここでは例えば基板11側から順に窒素含有層1 a-1, 1 a-2および透明導電層1 b-1, 1 b-2が配置されている。

[0371] 以上のような構成の有機電界発光素子EL-5の作製方法は、第1実施形態と同様であり、基板11側の層から順に各層をパターン成膜すれば良い。

[0372] <有機電界発光素子EL-5の効果>

以上説明した有機電界発光素子EL-5であっても、先に説明した導電性と光透過性とを兼ね備えた透明導電層1 b-1, 1 b-2を、発光ユニット3-1, 3-2間および発光ユニット3-2, 3-3間に挟持させた構成である。このため、第1実施形態と同様に、発光ユニット3-1, 3-2, 3-3に対して透明導電層1 b-1, 1 b-2から十分に電荷を注入して発光効率を確保しつつ、各発光ユニット3-1, 3-2, 3-3で発生させた発光光hの透明導電層1 b-1, 1 b-2における吸収を抑えることにより、光取り出し効率の向上を図ることが可能になる。またこれにより、所定輝度を得るための駆動電圧の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

[0373] 尚、本第5実施形態においては、3層の発光ユニット3-1, 3-2, 3-3を積層する構成としたが、さらに多数の発光ユニットを積層させても良い。この場合であっても、各発光ユニット間に、透明導電層1 b-1, 1 b-2とこれに隣接する窒素含有層1 a-1, 1 a-2を挟持させた構成とする。窒素含有層1 a-1, 1 a-2は、透明導電層1 b-1, 1 b-2の基板11側に隣接させる。

[0374] <変形例1との組み合わせ>

また本第5実施形態の構成も、第1実施形態の変形例1の構成と組み合わせることができる。この場合、第1電極5および第2電極7と共に、透明導電

層 1 b-1, 1 b-2にも駆動電圧を印加する構成とする。この際、各発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3を挟持して配置される第 1 電極 5、および透明導電層 1 b-1, 1 b-2のうちの少なくとも一方、および第 2 電極 7 間に、駆動電圧を印加する構成を選択することができる。透明導電層 1 b-1, 1 b-2に印加する駆動電圧は、陽極（例えば第 1 電極 5）に印加する電圧と、陰極（例えば第 2 電極 7）に印加する電圧との中間電位であり、陽極側から順に高電位に設定すれば良い。

[0375] このように第 5 実施形態に変形例 1 を組み合わせた構成では、透明導電層 1 b-1, 1 b-2に印加する中間電位を調整することにより、発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3での発光割合を任意に変化させることが可能である。このため、発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3のそれぞれが、R（赤）、G（緑）、B（青）のそれぞれの発光光 h が得られるように構成されている場合、このような発光割合の制御によってフルカラー発光の制御も可能である。

[0376] <変形例 2 との組み合わせ>

さらに本第 5 実施形態の構成は、第 1 実施形態の変形例 2 の構成と組み合わせることができる。この場合、各発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3を構成する層の積層順を、全て同一方向とせず、発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3のうちの幾つかを逆積みとしても良い。このような構成であっても、各発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3間に配置される窒素含有層 1 a-1, 1 a-2と透明導電層 1 b-1, 1 b-2とは、基板 1 1 側から順に窒素含有層 1 a-1, 1 a-2と透明導電層 1 b-1, 1 b-2となっていることとする。

[0377] またこの場合、各発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3のそれぞれ挟持して配置される第 1 電極 5、第 2 電極 7、および 2 つの透明導電層 1 b-1, 1 b-2間に印加する駆動電圧は、各発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3における正孔注入側が+の極性となり、電子注入側が-の極性となるように調整される。

[0378] このように第 5 実施形態に変形例 2 を組み合わせた構成であっても、第 1 実施形態の変形例 2 と同様の効果を得ることができる。

[0379] また本第 5 実施形態および変形例 1, 2 との組み合わせの各構成は、さらに

第2実施形態および第3実施形態と組み合わせ、第1電極5および第2電極7の少なくとも一方を透明導電層で構成し、透明導電層の基板11側に隣接させて窒素含有層を設けた構成とすることもできる。

[0380] ≪ 9. 第6実施形態 ≫

(3つ以上の発光ユニット間のうちの1箇所に透明導電層を設けた例)

図9は、上述した透明導電層1bを用いたタンデム構造の有機電界発光素子の第6実施形態を示す断面構成図である。以下にこの図に基づき、第6実施形態の有機電界発光素子EL-6の特徴的な構成を説明する。尚、他の実施形態と同様の構成要素についての重複する詳細な説明は省略する。

[0381] 図9に示す有機電界発光素子EL-6は、図8を用いて説明した第5実施形態の有機電界発光素子に設けられた窒素含有層1aと透明導電層1bの積層体の1つを、絶縁性の電荷発生層21に置き換えた構成である。つまり、3つ以上（ここでは3つ）の発光ユニット3-1, 3-2, 3-3が積層して設けられ、これらの間に窒素含有層1aおよび透明導電層1bの積層体、または絶縁性の電荷発生層21が配置された構成である。ここでは一例として、基板11側の発光ユニット3-1, 3-2間に、窒素含有層1aと透明導電層1bの積層体が挟持され、その上部の発光ユニット3-2, 3-3間に絶縁性の電荷発生層21が挟持された構成であることとするが、逆であっても良い。

[0382] 各発光ユニット3-1, 3-2, 3-3の構成は、第1実施形態で説明したと同様であり、全体的な層構造が限定されることはなく、それぞれが個別に一般的な層構造を有していて良い。また各発光ユニット3-1, 3-2, 3-3は、同一色の発光光hが得られるように構成されていても良く、異なる色の発光光hが得られるように構成されていても良い。この場合、各発光ユニット3-1, 3-2, 3-3が、それぞれ赤(R)、緑(G)、青(B)の発光光hを得られる構成として白色発光としても良い。

[0383] また窒素含有層1aおよび透明導電層1bは先に説明した構成のものであり、ここでは例えば基板11側から順に窒素含有層1a、透明導電層1bが配置されている。

[0384] 以上のような構成の有機電界発光素子E L-6の作製方法は、第1実施形態と同様であり、基板11側の層から順に各層をパターン成膜すれば良い。

[0385] <電荷発生層>

絶縁性の電荷発生層21は、例えば2種類の物質間で酸化還元反応によってラジカルカチオンとラジカルアニオンからなる電荷移動錯体が形成された層が例示される。この場合、電荷移動錯体中のラジカルカチオン状態（ホール）とラジカルアニオン状態（電子）が、電圧印加時にそれぞれ陰極方向と陽極方向へ移動することにより、前記電荷発生層の陰極側に接する発光ユニットへホールを注入し、電荷発生層の陽極側に接する発光ユニットへ電子を注入する。このような絶縁性の電荷発生層21としては、例えば電子供与性を有する有機化合物（一例としてアリアルアミン化合物）と、この有機化合物と酸化還元反応による電荷移動錯体を形成する材料（金属酸化物：5酸化バナジウムや金属ハロゲン化物）との混合層または積層体が例示される（特開2003-272860号公報参照）。

[0386] 以上のような構成の有機電界発光素子E L-6の作製方法は、第1実施形態と同様であり、基板11側の層から順に各層をパターン成膜すれば良い。また電荷発生層21の形成は、任意の成膜方法が適用されるが、蒸着法が好ましく適用される。

[0387] <有機電界発光素子E L-6の効果>

以上説明した有機電界発光素子E L-6であっても、先に説明した導電性と光透過性とを兼ね備えた透明導電層1bを、発光ユニット3-1、3-2間に挟持させた構成である。このため、第1実施形態と同様に、発光ユニット3-1、3-2、3-3に対して透明導電層1bから十分に電荷を注入して発光効率を確保しつつ、各発光ユニット3-1、3-2、3-3で発生させた発光光hの透明導電層1bにおいての吸収を抑えることにより、光取り出し効率の向上を図ることが可能になる。またこれにより、所定輝度を得るための電流密度の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

[0388] 尚、本第6実施形態においては、3層の発光ユニット3-1、3-2、3-3を

積層する構成としたが、さらに多数の発光ユニットを積層させても良い。この場合であっても、複数の発光ユニット間の少なくとも1箇所、窒素含有層1 aを隣接させた透明導電層1 bを挟持させ、他の発光ユニット間に絶縁性の電荷発生層2 1を挟持させた構成とする。窒素含有層1 aは、透明導電層1 bの基板1 1側に隣接させる。

[0389] <変形例1との組み合わせ>

また本第6実施形態の構成も、第1実施形態の変形例1の構成と組み合わせることができる。この場合、第1電極5－透明導電層1 b間に駆動電圧V 1を印加し、さらに透明導電層1 b－第2電極7間に駆動電圧V 2を印加する構成とする。これにより、第1実施形態の変形例1と同様の効果を得ることができる。

[0390] <変形例2との組み合わせ>

さらに本第6実施形態の構成は、第1実施形態の変形例2の構成と組み合わせても良い。この場合、透明導電層1 bを挟んで配置された発光ユニット3-1と、発光ユニット3-2、3-3とで、これらを構成する層の積層順を逆にすることができる。このような構成であっても、各発光ユニット3-1、3-2、3-3間に配置される窒素含有層1 aと透明導電層1 bとは、基板1 1側から窒素含有層1 a、透明導電層1 bとなっていることとする。

[0391] またこの場合、第1電極5、第2電極7、および透明導電層1 bに印加する駆動電圧は、各発光ユニット3-1、3-2、3-3における正孔注入側が+の極性となり、電子注入側が-の極性となるように調整される。

[0392] このように第6実施形態に変形例2を組み合わせた構成であっても、第1実施形態の変形例2と同様の効果を得ることができる。

[0393] また本第6実施形態および変形例1、2との組み合わせの各構成は、さらに第2実施形態および第3実施形態と組み合わせ、第1電極5および第2電極7の少なくとも一方を透明導電層1 bで構成し、この基板1 1側に隣接させて窒素含有層1 aを設けた構成とすることもできる。

[0394] ≪10. 有機電界発光素子の用途≫

上述した各構成の有機電界発光素子は、上述したように面発光体であるため各種の発光光源として用いることができる。例えば、家庭用照明や車内照明などの照明装置、時計や液晶用のバックライト、看板広告用照明、信号機の光源、光記憶媒体の光源、電子写真複写機的光源、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、特にカラーフィルターと組み合わせた液晶表示装置のバックライト、照明用光源としての用途に有効に用いることができる。

[0395] また、本発明の有機電界発光素子は、照明用や露光光源のような一種のランプとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像を直接視認するタイプの表示装置（ディスプレイ）として使用してもよい。この場合、近年の照明装置およびディスプレイの大型化にともない、有機電界発光素子を設けた発光パネル同士を平面的に接合する、いわゆるタイリングによって発光面を大面積化しても良い。

[0396] 動画再生用の表示装置として使用する場合は、単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。また異なる発光色を有する本発明の有機電界発光素子を２種以上使用することにより、カラーまたはフルカラー表示装置を作製することが可能である。

[0397] 以下では、用途の一例として照明装置について説明し、次にタイリングによって発光面を大面積化した照明装置について説明する。

[0398] ≪ １１．照明装置－１ ≫

本発明の照明装置は、上記有機電界発光素子を有する。

[0399] 本発明の照明装置に用いる有機電界発光素子は、上述した構成の各有機電界発光素子に共振器構造を持たせた設計としてもよい。共振器構造として構成された有機電界発光素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機的光源、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、これらに限定されない。また、レーザー発振をさせることにより上記用途に使用してもよい。

[0400] 尚、本発明の有機電界発光素子に用いられる材料は、白色の発光を生じる有機電界発光素子（白色有機電界発光素子ともいう）に適用できる。例えば、複数の発光材料により複数の発光色を同時に発光させて混色により白色発光を得ることもできる。複数の発光色の組み合わせとしては、赤色、緑色、青色の3原色の3つの発光極大波長を含有させたものでもよいし、青色と黄色、青緑と橙色等の補色の関係を利用した2つの発光極大波長を含有したものでもよい。

[0401] また、複数の発光色を得るための発光材料の組み合わせは、複数のリン光または蛍光で発光する材料を複数組み合わせたもの、蛍光またはリン光で発光する発光材料と、発光材料からの光を励起光として発光する色素材料との組み合わせたもののいずれでもよいが、白色有機電界発光素子においては、発光ドーパントを複数組み合わせて混合したものでもよい。

[0402] このような白色有機電界発光素子は、各色発光の有機電界発光素子をアレー状に個別に並列配置して白色発光を得る構成と異なり、有機電界発光素子自体が白色を発光する。このため、素子を構成するほとんどの層の成膜にマスクを必要とせず、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で例えば電極膜を形成でき、生産性も向上する。

[0403] またこのような白色有機電界発光素子の発光層に用いる発光材料としては、特に制限はなく、例えば液晶表示素子におけるバックライトであれば、CF（カラーフィルター）特性に対応した波長範囲に適合するように、本発明に係る金属錯体、また公知の発光材料の中から任意のものを選択して組み合わせて白色化すればよい。

[0404] 以上に説明した白色有機電界発光素子を用いれば、実質的に白色の発光を生じる照明装置を作製することが可能である。

[0405] ≪ 1 2. 照明装置 - 2 ≫

また本発明の有機電界発光素子は、複数用いて発光面を大面積化した照明装置としても用いることができる。この場合、透明基板上に有機電界発光素子を設けた複数の発光パネルを、支持基板上に複数配列する（すなわちタイ

リングする）ことによって発光面を大面積化する。支持基板は、封止材を兼ねるものであっても良く、この支持基板と、発光パネルの透明基板との間に有機電界発光素子を挟持する状態で各発光パネルをタイリングする。支持基板と透明基板との間には接着剤を充填し、これによって有機電界発光素子を封止しても良い。尚、発光パネルの周囲には、第1電極および第2電極の端子を露出させておく。また、導電性の導電層（例えば透明導電層1b）にも駆動電圧を印加する場合であれば、その端子も露出させておく。

[0406] このような構成の照明装置では、各発光パネルの中央が発光領域となり、発光パネル間には非発光領域が発生する。このため、非発光領域からの光取り出し量を増加させるための光取り出し部材を、光取り出し面の非発光領域に設けても良い。光取り出し部材としては、集光シートや光拡散シートを用いることができる。

実施例 1

[0407] 《透明導電層の作製》

以下に説明するように、試料101～112の各透明導電層を、導電性領域の面積が5cm×5cmとなるように作製した。

[0408] 試料101では、銀を用いた膜厚5nmの透明導電層を、単層で作製した。また試料102～112では、各化合物で構成された窒素含有層を形成し、この上部に隣接させて銀を用いた膜厚5nmの透明導電層を作製した。

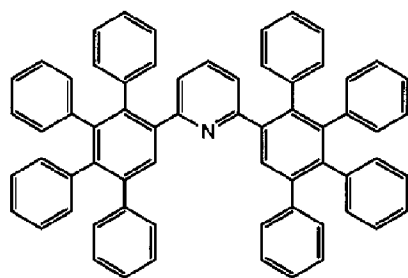
[0409] 試料102の透明導電層の作製においては、この下地となる窒素含有層に換えて、化合物として窒素を含有しないアントラセン（化合物No.01）を用いた層を形成した。

[0410] 一方、試料103～112のそれぞれの透明導電層の作製においては、窒素含有層を構成する化合物として、下記に示すような窒素を含有する各化合物No.02～No.11を用いた。これらの化合物のうち、化合物No.08は一般式（1）に含まれる化合物10であり、化合物No.11は一般式（2）に含まれる化合物である。

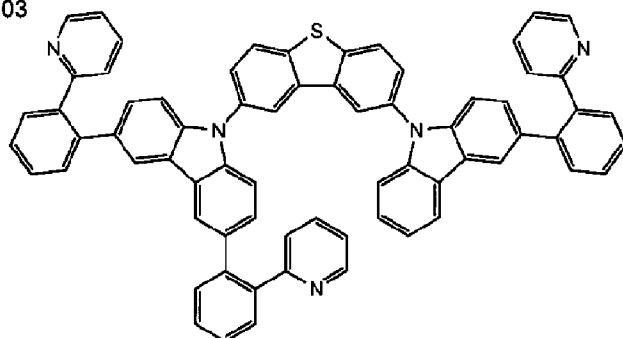
[0411]

[化70]

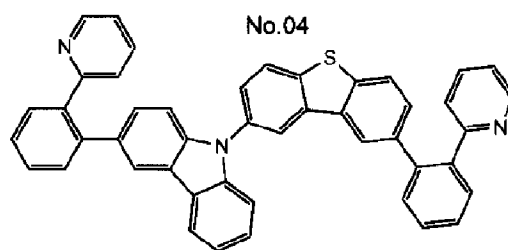
No.02



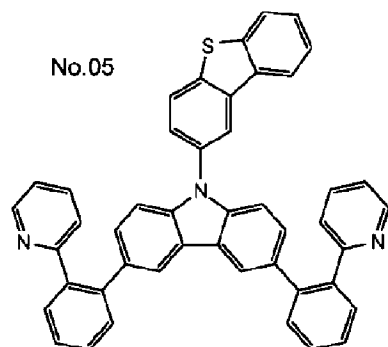
No.03



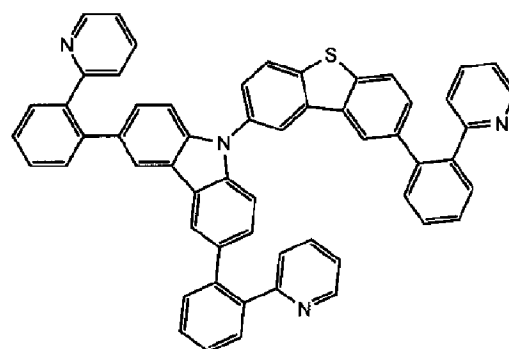
No.04



No.05

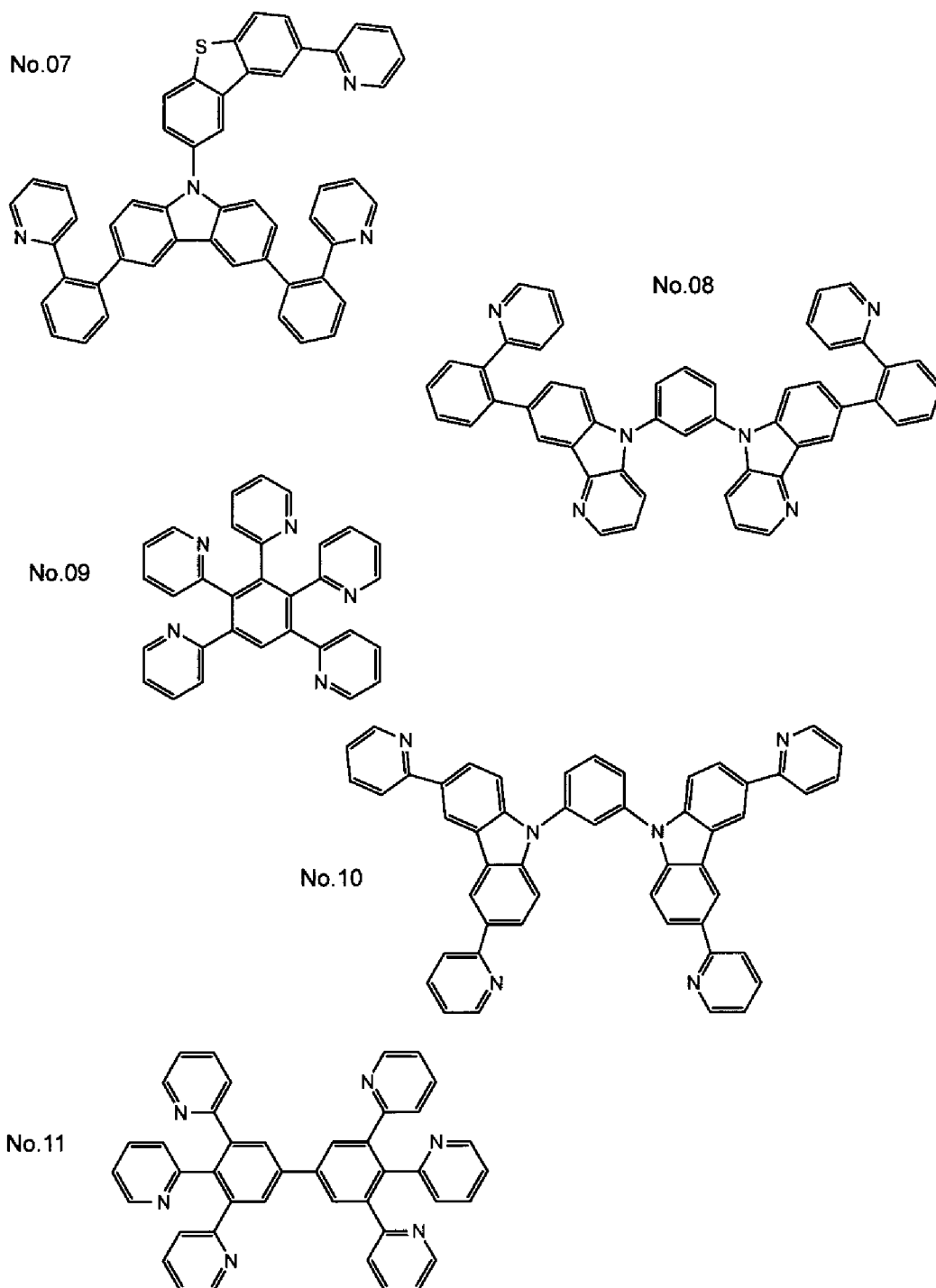


No.06



[0412]

[化71]



[0413] 下記表 1 には、試料 1 0 3 ~ 1 1 2 で用いた各化合物No. 02~No.11についての、銀（A g）と安定的に結合する化合物中の窒素原子の数 [n]、銀（A g）と化合物中における窒素（N）との相互作用エネルギー [ΔE]、および化合物の表面積 [s]、およびこれらから算出した有効作用エネルギー[

ΔE_{ef}]を示した。 $[n]$ を求めるための化合物中の窒素原子を含む環に対して当該窒素原子と銀とのなす二面角 $[D]$ 、および $[\Delta E]$ は、Gaussian 03(Gaussian, Inc., Wallingford, CT, 2003)を用いて算出した。尚、これらの試料103～112で用いた各化合物No. 02～No. 11においては、二面角 $D < 10$ 度の範囲である窒素原子を、数 $[n]$ にカウントした。

[0414] [表1]

実施例I

試料	窒素含有層 (25nm)					透明導電層 (Ag:5nm)
	化合物	n [個]	ΔE [kcal/mol]	s [Å ²]	ΔE_{ef} [kcal/mol · Å ²]	シート抵抗 [Ω/sq.]
101	—	—	—	—	—	測定不可
102	No. 01 (アントラセン)	—	—	—	—	測定不可
103	No. 02	1	-51.6	902.7	-0.057161848	測定不可
104	No. 03	3	-36.418	981	-0.111370031	963
105	No. 04	2	-48.933	666	-0.146945946	915750
106	No. 05	2	-49.419	666	-0.148405405	39120
107	No. 06	3	-43.768	821	-0.15993179	769
108	No. 07	3	-45.834	739	-0.186064953	3337
109	No. 08	4	-41.989	729	-0.230392318	278
110	No. 09	2	-56.976	479	-0.237895616	122
111	No. 10	4	-45.01	723	-0.249017981	792
112	No. 11	4	-57.302	634	-0.361526814	52

[0415] 化合物No. 02は、化合物中に含まれる窒素原子(N)と、透明導電層を構成する銀(Ag)との関係を示す有効エネルギー $[\Delta E_{ef}]$ が、 $\Delta E_{ef} > -0.1$ である。これに対して、化合物No. 03～No. 11の化合物は、 $\Delta E_{ef} \leq -0.1$ である。

[0416] <試料101の透明導電層の作製手順>

先ず、透明な無アルカリガラス製の基材を、市販の真空蒸着装置の基材ホ

ルダーに固定し、真空蒸着装置の真空槽に取り付けた。またタングステン製の抵抗加熱ボートに銀（Ag）を入れ、当該真空槽内に取り付けた。次に、真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、抵抗加熱ボートを通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で、膜厚 5 nm の銀からなる透明導電層を基材上に形成した。

[0417] <試料 102～112 の透明導電層の作製手順>

透明な無アルカリガラス製の基材を市販の真空蒸着装置の基材ホルダーに固定した。また、各透明導電層の作製において、上記各化合物 No. 01～No. 11 をタンタル製抵抗加熱ボートに入れた。これらの基板ホルダーと加熱ボートとを真空蒸着装置の第 1 真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに銀（Ag）を入れ、第 2 真空槽内に取り付けた。

[0418] この状態で、先ず、第 1 真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、各化合物の入った加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で基材上に膜厚 25 nm の各化合物で構成された窒素含有層を設けた。

[0419] 次に、窒素含有層まで成膜した基材を真空のまま第 2 真空槽に移し、第 2 真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、銀の入った加熱ボートを通電して加熱した。これにより、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で膜厚 5 nm の銀からなる透明導電層を形成し、窒素含有層に隣接させた状態で、試料 102～112 の透明導電層を得た。

[0420] <実施例 1 の各試料の評価>

上記で作製した試料 101～112 の各透明導電層について、シート抵抗値を測定した。シート抵抗値の測定は、抵抗率計（三菱化学社製 MCP-T610）を用い、四探針法定電流印加方式で行った。この結果を上記表 1 に合わせて示す。

[0421] <実施例 1 の評価結果>

表 1 から明らかなように、有効作用エネルギー ΔE_{eff} が $\Delta E_{\text{eff}} \leq -0.1$ である化合物 No. 03～No. 11 を用いた窒素含有層に隣接させた試料 104

～ 1 1 2 の透明導電層は、5 nm と極薄膜でありながらも、シート抵抗値の測定が可能であり、単層成長型 (Frank-van der Merwe : FM 型) の膜成長によってほぼ均一な膜厚で形成されていることが確認された。これに対して、窒素含有層を設けていない単層構造の試料 1 0 1 の透明導電層、窒素を含有しない化合物 No. 1 を用いて下地となる層に隣接させて設けた試料 1 0 2 の透明導電層、および $\Delta E_{ef} > -0.1$ である化合物 No. 02 を用いた窒素含有層に隣接させた試料 1 0 3 の透明導電層は、シート抵抗の測定が不可能であった。

[0422] また図 1 0 には、窒素含有層を構成する化合物 No. 03～No. 11 についての有効作用エネルギー ΔE_{ef} と、これに隣接する各透明導電層について測定されたシート抵抗との関係を示す。この図 1 0 から、有効作用エネルギー ΔE_{ef} が $-0.5 \leq \Delta E_{ef} \leq -0.1$ の確認された範囲では、 ΔE_{ef} の値が低いほど、透明導電層のシート抵抗が低くなる傾向が明らかである。また、有効作用エネルギー ΔE_{ef} が $-0.5 \leq \Delta E_{ef} \leq -0.2$ の範囲であれば、シート抵抗が 1 0 0 0 [$\Omega/\text{sq.}$] 以下に保たれてさらに好ましい。

[0423] 以上より、有効作用エネルギー ΔE_{ef} を指標として窒素含有層を構成する化合物を選択して用いることにより、光透過性を得るために薄膜でありながらも低抵抗な透明導電層が得られることが確認された。

実施例 2

[0424] ≪ 2 層タンデム : ボトムエミッション型の有機電界発光素子の作製 ≫

図 1 1 に示すように、試料 2 0 1～2 1 0 として、2 層タンデム : ボトムエミッション型の有機電界発光素子を作製した。また図 1 2 に示すように、比較の試料 2 1 1, 2 1 2 として、単層構造のボトムエミッション型の有機電界発光素子を作製した。尚、下記表 2 には、試料 2 0 1～2 1 2 の主要部の構成を示した。

[0425] < 試料 2 0 1～2 0 8 の作製 >

図 1 1 を参照し、先ず 5 0 mm × 5 0 mm で厚さ 0.7 mm の透明なガラ

ス製の基板 11 上に、厚さ 180 nm となる条件で ITO をスパッタ法で成膜、パターニングし、ITO で構成された取り出し電極部分を含む面状の第 1 電極 5 を形成した。この第 1 電極 5 は、陽極として形成した。ITO で構成された第 1 電極 5 を設けた基板 11 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。

[0426] 次に、第 1 電極 5 が形成された基板 11 を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、第 1 電極 5 の形成面側に蒸着マスクを対向配置し、真空蒸着装置の第 1 真空槽に取り付けた。また真空蒸着装置内の加熱ボートの各々に、発光ユニット 3-1, 3-2、および窒素含有層 1a を構成する各材料を、それぞれの層の成膜に最適な量で充填し、当該第 1 真空槽内に取り付けた。尚、加熱ボートはタングステン製抵抗加熱用材料で作製されたものを用いた。

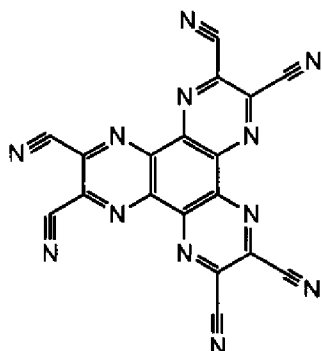
[0427] 次に、真空蒸着装置の第 1 真空槽内を 4×10^{-4} Pa まで減圧し、各材料が入った加熱ボートを順次通電して加熱することにより、以下のように各層を成膜した。

[0428] 先ず、正注入材料として下記構造式 H I - 1 で示す化合物が入った加熱ボートに通電して加熱し、また、下記構造式 H I - 2 で示す化合物が入った加熱ボートに通電して加熱し、第 1 電極 5 上に正孔注入層を形成した。この際、各加熱ボートへの通電を調整することで化合物 H I - 1 および化合物 H I - 2 の蒸着速度を 0.1 nm/秒 ~ 0.2 nm/秒で同一とし、膜厚 15 nm とした。

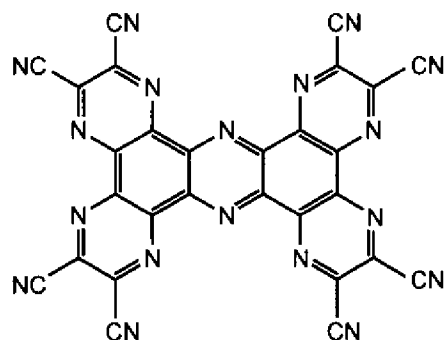
[0429]

[化72]

HI-1

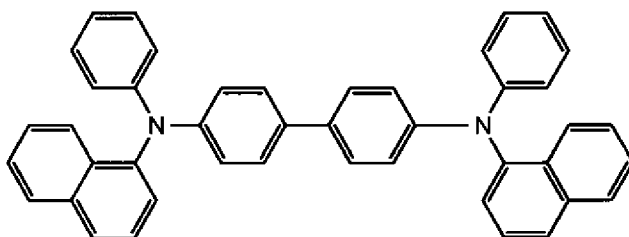


HI-2



[0430] 次いで、正孔輸送材料として下記 α -NPDが入った加熱ボートに通電して加熱し、正孔注入層上に正孔輸送層を形成した。この際、蒸着速度0.1 nm/秒~0.2 nm/秒、膜厚20 nmとした。

[0431] [化73]

 α -NPD

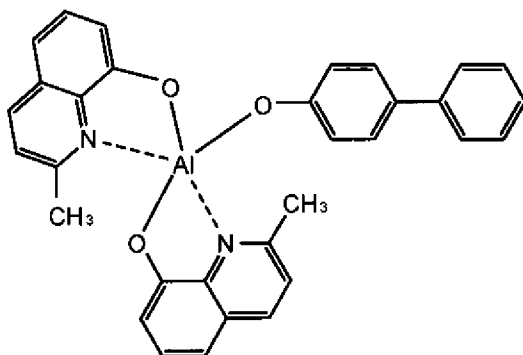
[0432] 次に、先に構造式を示したホスト材料H4が入った加熱ボートと、先に構造式を示した燐光発光性化合物Ir-48（青）、Ir-1（緑）、Ir-9（赤）が入ったそれぞれの加熱ボートを独立に通電し、ホスト材料と各色の燐光発光性化合物とよりなる発光層を、正孔輸送層上に成膜した。この際、蒸着速度が、H4 : Ir-48 : Ir-1 : Ir-9 = 88 : 7 : 4 : 1（体積比）となるように、加熱ボートの通電を調節した。また膜厚30 nmとした。

[0433] 次いで、正孔阻止材料として下記構造式に示すBAIqが入った加熱ボートに通電して加熱し、BAIqよりなる正孔阻止層を、発光層上に成膜した

。この際、蒸着速度0.1 nm/秒～0.2 nm/秒、膜厚10 nmとした。

[0434] [化74]

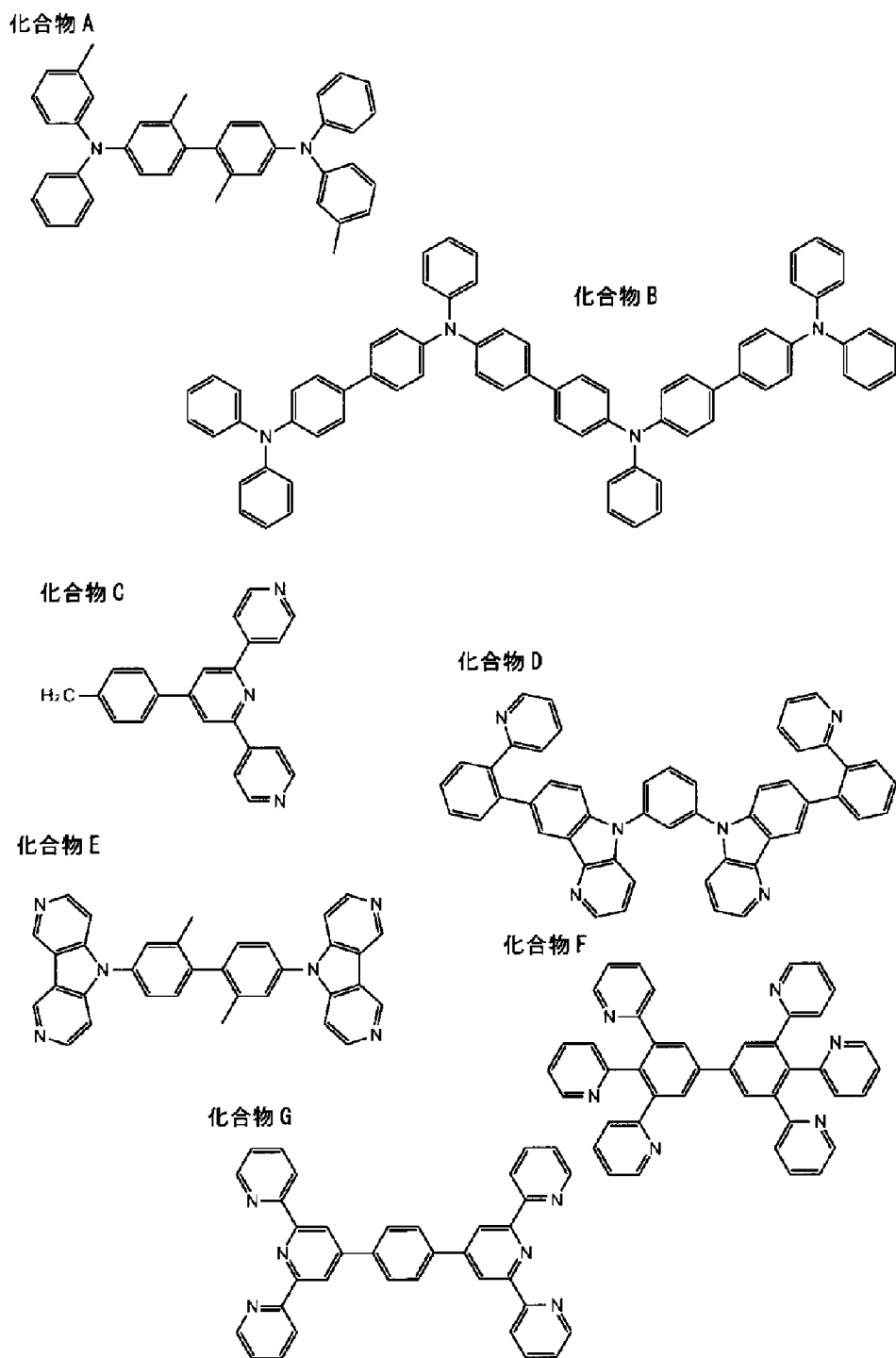
BAIq



[0435] その後、試料201～208のそれぞれ作製において、下記に示す窒素を含有する化合物A～Gの入った加熱ボートと、フッ化カリウムの入った加熱ボートとを、それぞれ独立に通電し、各化合物A～Gとフッ化カリウムとよりなる窒素含有層1aを、発光層上に形成した。この際、蒸着速度が化合物：フッ化カリウム＝75：25になるように、加熱ボートの通電を調節した。また膜厚30 nmとした。この窒素含有層1aは、電子注入層と電子輸送層とを兼ねた電子輸送・注入層としても機能し、上述した正孔注入層からこの窒素含有層1aまでが発光ユニット3-1を構成する層となる。これにより、上述した正孔注入層からこの窒素含有層1aまでの積層構造を有する白色発光の発光ユニット3-1を形成した。尚、化合物Dは、実施例1の化合物No. 08であり、一般式(1)に含まれる化合物10である。化合物Fは、実施例1の化合物No. 11であり、一般式(2)に含まれる化合物113である。

[0436]

[化75]



[0437] 次に、窒素含有層 1 a までを形成した基板 1 1 を、真空蒸着装置の第 2 真空槽内に移送し、第 2 真空槽内を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、第 2 真空槽内に取り付けられた銀の入った加熱ボートを通電して加熱した。これにより、蒸着速度 0.3 nm/秒で銀 (Ag) を用いて構成された透明導電層 1 b

を形成した。この際、試料201では膜厚14 nmの透明導電層1bを形成し、試料202～208では膜厚8.4 nmの透明導電層1bを形成した。

[0438] その後、上述した発光ユニット3-1の形成と同様の工程を繰り返すことにより、透明導電層1b上に2層目の発光ユニット3-2を形成した。この際、発光ユニット3-2の最上層を構成する電子輸送・注入層として、上述した窒素含有層1aを形成した。

[0439] 以上の後には、発光ユニット3-2が形成された基板11を、真空蒸着装置の第3真空槽内に移送し、第3真空槽内を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、第3真空槽内に取り付けられたアルミニウムの入った加熱ボートを通電して加熱した。これにより、蒸着速度0.2 nm/秒で膜厚120 nmのアルミニウムからなる第2電極7を形成した。この第2電極7は、陰極として用いられる。以上により、基板11上に2層タンデムのボトムエミッション型の有機電界発光素子を形成した。

[0440] その後、有機電界発光素子を、厚さ300 μ mのガラス基板からなる透明封止材で覆い、有機電界発光素子を囲む状態で、透明封止材と基板との間に接着剤（シール材）を充填した。接着剤としては、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）を用いた。透明封止材と基板との間に充填した接着剤に対して、ガラス基板（透明封止材17）側からUV光を照射し、接着剤を硬化させて有機電界発光素子を封止した。

[0441] 尚、有機電界発光素子の形成においては、各層の形成に蒸着マスクを使用し、5 cm×5 cmの基板13における中央の4.5 cm×4.5 cmを発光領域Aとし、発光領域Aの全周に幅0.25 cmの非発光領域を設けた。また、陽極である第1電極5と、陰極である第2電極7は、発光ユニット3-1、3-2によって絶縁された状態で、基板11の周縁に端子部分を引き出された形状で形成した。

[0442] 以上のようにして、基板11上に有機電界発光素子を設け、これを透明封止材と接着剤とで封止した試料の有機電界発光素子の各発光パネルを得た。これらの各発光パネルにおいては、発光ユニット3-1、3-2の発光層で発生

した発光光 $h\nu$ が、基板 11 側から取り出される。

[0443] <試料 209 の作製>

上述した試料 201～208 の作製において、銀 (Ag) で構成された透明導電層 1b の形成に換えて、マグネシウム (Mg) と銀 (Ag) との共蒸着を行った。この際、 $Mg : Ag = 90 : 10$ (原子数%) となるように透明導電層 1b を形成した。透明導電層 1b の膜厚は 8.4 nm とした。これ以外は、試料 201～208 と同様の手順で有機電界発光素子を作製した。尚、窒素含有層 1a としては、化合物 C を用いた。

[0444] <試料 210 の作製>

上述した試料 201～208 の作製において、銀 (Ag) で構成された透明導電層 1b の形成に換えて、ITO のスパッタ成膜を行った。この際、発光ユニット 3-1 に対するダメージを防止するため、成膜速度を 0.01 nm/sec とした。これにより、膜厚 120 nm の ITO からなる透明導電層 1b を形成した。これ以外は、試料 201～208 と同様の手順で有機電界発光素子を作製した。尚、窒素含有層 1a としては、化合物 C を用いた。

[0445] <試料 211, 212 の作製>

図 12 に示すように、比較として単層構造のボトムエミッション型の有機電界発光素子を作製した。この際、先ず、上述した試料 201～208 で説明したと同様に、最上層に窒素含有層 1a を設けた発光ユニット 3-1 まで形成した。その後、発光ユニット 3 が形成された基板 11 を、真空蒸着装置の第 3 真空槽内に移送し、第 3 真空槽内を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、第 3 真空槽内に取り付けられたアルミニウムの入った加熱ボートを通電して加熱した。窒素含有層 1a 上に、蒸着速度 0.2 nm/秒で膜厚 120 nm のアルミニウムからなる第 2 電極 7 を形成し、有機電界発光素子を作製した。尚、窒素含有層 1a としては、試料 211 では化合物 A を用い、試料 212 では化合物 E を用いた。

[0446] <実施例 2 の各試料の評価-1>

試料 201～212 で作製した有機電界発光素子 (発光パネル) について

、発光色度を評価した。その結果、試料 201～212 の全ての素子は、 2° 視野角正面輝度が 1000 cd/m^2 での CIE 1931 表色系における色度が、 $X = 0.45 \pm 0.02$ 、 $Y = 0.41 \pm 0.02$ の範囲であり、白色であることを確認した。尚、輝度の測定には分光放射輝度計 CS-1000（コニカミノルタセンシング製）を用いた。

[0447] <実施例 2 の各試料の評価－2>

試料 201～212 で作製した有機電界発光素子（発光パネル）について、駆動電圧を測定した。駆動電圧の測定においては、上記分光放射輝度計を用い、各有機電界発光素子の基板 11 側での正面輝度が 1000 cd/m^2 となるとき電圧を駆動電圧として測定した。得られた駆動電圧の数値が小さいほど、好ましい結果であることを表わす。この結果を下記表 2 に合わせて示す。

[0448] <実施例 2 の各試料の評価－3>

また試料 201～212 で作製した有機電界発光素子（発光パネル）について、輝度ムラの評価を行った。輝度ムラの評価においては、各有機電界発光素子に 2.5 mA/cm^2 の電流を加え、基板 11 側の発光面における中心の輝度（中心輝度）と、透明電極 1 側の給電点に近い端部の輝度（端部輝度）とを測定した。輝度の測定には上記分光放射輝度計を用いた。そして、測定された端部輝度に対する中心輝度を、輝度ムラとして算出した。このため、輝度ムラは、数値が 1 に近いほど好ましい結果であることを表わす。この結果を下記表 2 に合わせて示す。

[0449] <実施例 2 の各試料の評価－4>

さらに試料 201～212 で作製した有機電界発光素子（発光パネル）について、外部量子効率（External Quantum Efficiency: EQE）の評価を行った。ここでは、各有機電界発光素子を発光させた際の輝度、および発光スペクトルを、分光放射輝度計 CS-1000（コニカミノルタセンシング社製）を用いて測定し、これらの測定値に基づいて輝度換算法により外部量子効率を算出した。ここでは、さらに試料 211 の有機電界発光素子の値を 1

00とした相対値を算出し、この結果を下記表2に合わせて示す。

[0450] <実施例2の各試料の評価－5>

さらに試料201～212で作製した有機電界発光素子（発光パネル）について、寿命特性として輝度半減寿命を測定した。輝度半減寿命の測定においては、各有機電界発光素子の基板11側での正面輝度が1000cd/m²となるときの電流を求めた。得られた電流を一定に保ち、経時での輝度の変化を上記分光放射輝度計で測定し、初期輝度に対する輝度が50%になるのに要する時間を、各有機電界発光素子の輝度半減寿命とした。ここでは、試料211の有機電界発光素子の輝度半減寿命を100とした時の相対寿命を算出し、この結果を下記表2に合わせて示す。

[0451]

[表2]

実施例2《2層タンデム：ボトムエミッション》

試料	素子構成	第1電極 5 (陽極) 材料/膜厚 (nm)	窒素含有層1a (発光ユニット)		透明導電層 1b		第2電極 7 (陰極) 材料/膜厚 (nm)	評価結果				他	備考
			化合物	ΔE _{ef}	材料/製法	膜厚 (nm)		駆動電圧 (V)	輝度 ムラ	EQE 相対値	寿命 相対値		
201	Fig11	ITO/180	化合物A	-0.01	Ag/蒸着	14	Al/120	8.4	0.86	131	153		本発明
202			化合物B	-0.03		8.4		8.4	0.67	171	176		本発明
203			化合物C	-0.08				8.9	0.69	167	171		本発明
204			化合物D	-0.23				7.8	0.70	188	201		本発明
205			化合物E	-0.33				7.1	0.92	245	235		本発明
206			化合物F	-0.34				7.2	0.94	232	220		本発明
207			化合物G	-0.41				7.0	0.94	242	237		本発明
208								7.9	0.89	189	196		本発明
209	Fig11	ITO/180	化合物C	-0.08	MgAg (10%) /共蒸着	8.4	Al/120	7.9	0.54	174	82	寿命劣	比較
210					ITO/スパッタ	120		8.5	0.62	148	17	リーク発生・ 突然死	比較
211	Fig12	ITO/180	化合物A	-0.01	-			5.3	0.68	100	100		比較
212			化合物E	-0.33	-	-	4.1	0.95	120	124			比較

[0452] <実施例2の各試料の評価結果>

表2から明らかなように、積層された発光ユニット3-1、3-2間に、窒素含有層1aに隣接させた状態で銀(Ag)を主成分とした透明導電層1bを

配置した試料 201～208 の有機電界発光素子は、発光ユニット 3 が単層構造である試料 211, 212 と比較して、外部量子効率 (EQE) および寿命の両方が、向上していることが確認された。

[0453] 特に、窒素含有層 1a に用いられる窒素原子を含有する化合物として、有効作用エネルギー ΔE_{ef} が $\Delta E_{ef} \leq -0.1$ である化合物を用いた試料 205～208 の有機電界発光素子は、発光ユニット 3 が単層構造である試料 211, 212 と比較して、外部量子効率 (EQE) および寿命とも、2 倍程度かそれ以上に向上していることが確認された。

[0454] これに対して、積層された発光ユニット 3-1, 3-2 間に、銀 (Ag) を主成分としない透明導電層 1b を設けた試料 209, 210 の有機電界発光素子は、輝度ムラが大きく、外部量子効率 (EQE) は高いものの、寿命も劣化していた。

[0455] 特に、透明導電層 1b として ITO を用いた試料 210 では、 ± 2.5 V で駆動した場合の整流比が高くリーク電流が発生していることも確認され、さらに発光が突然消滅する現象が見られた。

[0456] 以上により、本発明構成の透明導電層を用いたタンデム構造の有機電界発光素子は、輝度ムラを抑える効果と共に、発光効率の向上と寿命特性の向上との両立を図ることが可能であることが確認された。

実施例 3

[0457] ≪3 層タンデム：両面発光型の有機電界発光素子の作製≫

図 13 に示すように、試料 301～313 として、3 層タンデム：両面発光型の有機電界発光素子を作製した。また図 14 に示すように、比較の試料 314, 315 として、単層構造の両面発光型の有機電界発光素子を作製した。尚、下記表 3 には、試料 301～315 の主要部の構成を示した。

[0458] <試料 301～308 の作製>

図 13 を参照し、先ず実施例 2 の試料 201～208 と同様に、膜厚 180 nm の ITO で構成された第 1 電極 5 を陽極として形成し、この上部に正孔注入材料として先に示した構造式 H1-2 に示す化合物を使用した以外は

、試料201～208と同様に第1層目の発光ユニット3-1を形成した。

[0459] 次に、実施例2の試料201～208の透明導電層の形成と同様にして、銀（Ag）で構成された第1層目の透明導電層1b-1を形成した。この際、試料301～306、308では膜厚8.4nmの透明導電層1b-1を形成し、試料307では膜厚5.5nmの透明導電層1b-1を形成した。

[0460] その後、各試料301～308の作製において、上述した第1層目の発光ユニット3-1の形成工程～第1層目の透明導電層1b-1の形成工程までを、2回繰り返して行った。これにより、2層目の発光ユニット3-2（窒素含有層1a-2を含む）、2層目の透明導電層1b-2、3層目の発光ユニット3-3（窒素含有層1a-3を含む）、および3層目の透明導電層1b-3を形成した。3層目の透明導電層1b-3は、陰極となる第2電極7として形成した。ただし、試料307では、第3層目の透明導電層1b-3（第2電極7）の膜厚を、他の試料301～306、308と同様の膜厚8.4nmとした。

[0461] 以上により、基板11上に3層タンデムの両面発光型の有機電界発光素子を形成した。その後は、実施例2と同様に有機電界発光素子を封止した。

[0462] <試料309～311の作製>

上述した試料301～308の作製において、銀（Ag）で構成された全3層の透明導電層1b-1～1b-3の形成に換えて、マグネシウム（Mg）と銀（Ag）との共蒸着を行った。この際、試料309ではMg：Ag＝45：55（原子数%）、試料310ではMg：Ag＝55：45（原子数%）、試料311ではMg：Ag＝90：10（原子数%）となるように透明導電層1b-1～1b-3を形成した。膜厚は、3層とも8.4nmとした。これ以外は、試料301～308と同様の手順で有機電界発光素子を作製した。尚、窒素含有層1a-1～1a-3の形成には化合物Eを用いた。

[0463] <試料312、313の作製>

上述した試料301～308の作製において、銀（Ag）で構成された全3層の透明導電層1b-1～1b-3の形成に換えて、ITOのスputa成膜を行った。この際、試料312の作製においては成膜速度を0.01nm/s

e cとし、試料313の作製においては成膜速度を0.1nmとした。これにより、膜厚120nmのITOからなる透明導電層1b-1~1b-3を形成した。これ以外は、試料301~308と同様の手順で有機電界発光素子を作製した。尚、窒素含有層1a-1~1a-3の形成には化合物Eを用いた。

[0464] <試料314, 315の作製>

図14に示すように、比較として単層構造の両面発光型の有機電界発光素子を作製した。この際、先ず、上述した試料301~308で説明したと同様に、ITOで構成された第1電極5（陽極）上に、発光ユニット3を形成し、さらに透明導電層1bを形成した。透明導電層1bの膜厚は8.4nmとした。この透明導電層1bは、陽極となる第2電極7として形成した。尚、発光ユニット3の最上層を構成する窒素含有層1aとしては、試料314では先に構造式を示した化合物Aを用い、試料315では先に構造式を示した化合物Eを用いた。

[0465] その後は、実施例2と同様に有機電界発光素子を封止した。

[0466] <実施例3の各試料の評価-1>

試料301~315で作製した有機電界発光素子（発光パネル）について、発光色度を評価した。その結果、試料301~315のうち、試料313以外の全ての素子で発光が確認され、基板11側の2°視野角正面輝度=500cd/m²におけるCIE1931表色系における色度が、X=0.45±0.02、Y=0.41±0.02の範囲であり、白色であることを確認した。尚、輝度の測定には分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタセンシング製）を用いた。

[0467] <実施例3の各試料の評価-2~5>

試料301~315で作製した有機電界発光素子（発光パネル）について、実施例2と同様に、駆動電圧、輝度ムラ、外部量子効率（EQE）、および寿命を測定した。ただし、駆動電圧、外部量子効率（EQE）、および寿命については、基板11側での正面輝度を500cd/cm²とした。また、外部量子効率（EQE）および寿命は、試料315の有機電界発光素子の値

を100とした時の相対値を算出した。これらの結果を下記表3に合わせて示す。

[0468] [表3]

実施例3 <3層システム、片面発光>

試料	素子構成	第1電極5 (陰極)				透明導電層1b-1				空素含有層1a-2 (発光ユニット3-2)				透明導電層1b-2				空素含有層1a-3 (発光ユニット3-3)				透明導電層1b-3 (第2電極7:陽極)				他	備考												
		材料/膜厚 (nm)	材料	∠E _{eff}	材料/製法	膜厚 (nm)	材料	∠E _{eff}	材料/製法	膜厚 (nm)	材料	∠E _{eff}	材料/製法	膜厚 (nm)	材料	∠E _{eff}	材料/製法	膜厚 (nm)	材料	∠E _{eff}	材料/製法	膜厚 (nm)	駆動電圧 (V)	電圧ムラ	FQE 相対値			寿命 相対値											
301	Fig13	ITO/180	化合物A	-0.01	Ag/蒸着	8.4nm	化合物A	-0.01	Ag/蒸着	8.4nm	化合物A	-0.01	Ag/蒸着	8.4nm	化合物A	-0.01	Ag/蒸着	8.4nm	化合物A	-0.01	Ag/蒸着	8.4nm			15.9	0.59	209	195	本発明										
302			化合物B	-0.03			化合物B	-0.03			化合物B	-0.03			化合物B	-0.03			化合物B	-0.03					化合物B	-0.03	化合物B	-0.03	化合物B	-0.03	化合物B	-0.03	化合物B	-0.03	16.3	0.62	221	218	本発明
303			化合物C	-0.08			化合物C	-0.08			化合物C	-0.08			化合物C	-0.08			化合物C	-0.08					化合物C	-0.08	化合物C	-0.08	化合物C	-0.08	化合物C	-0.08	化合物C	-0.08	12.9	0.64	264	258	本発明
304			化合物D	-0.23			化合物D	-0.23			化合物D	-0.23			化合物D	-0.23			化合物D	-0.23					化合物D	-0.23	化合物D	-0.23	化合物D	-0.23	化合物D	-0.23	化合物D	-0.23	11.5	0.89	302	305	本発明
305			化合物E	-0.33			化合物E	-0.33			化合物E	-0.33			化合物E	-0.33			化合物E	-0.33					化合物E	-0.33	化合物E	-0.33	化合物E	-0.33	化合物E	-0.33	化合物E	-0.33	11.8	0.90	297	293	本発明
306			化合物F	-0.34		5.5nm	化合物F	-0.34			化合物F	-0.34	5.5nm		化合物F	-0.34	化合物F		-0.34	化合物F	-0.34				化合物F	-0.34	化合物F	-0.34	化合物F	-0.34	10.9	0.90	304	307	本発明				
307			化合物G	-0.41			化合物G	-0.41			化合物G	-0.41			化合物G	-0.41	化合物G		-0.41	化合物G	-0.41				化合物G	-0.41	化合物G	-0.41	化合物G	-0.41	化合物G	-0.41	11.2	0.82	317	320	本発明		
308			化合物G	-0.41		8.4nm	化合物G	-0.41		8.4nm	化合物G	-0.41	8.4nm	化合物G	-0.41	8.4nm	化合物G	-0.41	8.4nm	化合物G	-0.41				8.4nm	化合物G	-0.41	8.4nm	化合物G	-0.41	13.2	0.86	269	267	本発明				
309	Fig13	ITO/180			MgAg (55%) /共蒸着	8.4nm			MgAg (55%) /共蒸着	8.4nm			MgAg (55%) /共蒸着	8.4nm			MgAg (55%) /共蒸着	8.4nm			MgAg (55%) /共蒸着	8.4nm	11.0	0.56	296	237	本発明												
310			化合物E	-0.33	MgAg (45%) /共蒸着		化合物E	-0.33	MgAg (45%) /共蒸着		化合物E	-0.33	MgAg (45%) /共蒸着		化合物E	-0.33	MgAg (45%) /共蒸着		化合物E	-0.33	MgAg (45%) /共蒸着		化合物E	-0.33	MgAg (45%) /共蒸着	化合物E	-0.33	11.4	0.49	296	143	劣劣劣							
311					MgAg (10%) /共蒸着				MgAg (10%) /共蒸着				MgAg (10%) /共蒸着				MgAg (10%) /共蒸着				MgAg (10%) /共蒸着				MgAg (10%) /共蒸着			11.6	0.48	289	63	劣劣劣							
312	Fig13	ITO/180	化合物E	-0.33	ITO/zn ¹ /y ² (0.01nm/sec)	120nm	化合物E	-0.33	ITO/zn ¹ /y ² (0.01nm/sec)	120nm	化合物E	-0.33	ITO/zn ¹ /y ² (0.01nm/sec)	120nm	化合物E	-0.33	ITO/zn ¹ /y ² (0.01nm/sec)	120nm	化合物E	-0.33	ITO/zn ¹ /y ² (0.01nm/sec)	120nm	15.1	0.54	203	162	リーク発生												
313																																							
314	Fig14	ITO/180	-	-	-	-	化合物A	-	-	-	化合物A	-0.01	Ag蒸着	8.4nm	化合物A	-0.01	Ag蒸着	8.4nm	化合物A	-0.01	Ag蒸着	8.4nm	5.2	0.67	84	82	比較												
315																																							

[0469] <実施例3の各試料の評価結果>

表 3 から明らかなように、積層された発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3間および上部に、窒素含有層 1 a に隣接させた状態で銀 (A g) を主成分 (50%以上) とした透明導電層 1 b-1, 1 b-2, 1 b-3 を配置した試料 301 ~ 309 の有機電界発光素子は、発光ユニット 3 が単層構造である試料 314, 315 と比較して、外部量子効率 (E Q E) および寿命の両方が、向上していることが確認された。

[0470] このうち特に、窒素含有層 1 a に用いられる窒素原子を含有する化合物として、有効作用エネルギー ΔE_{ef} が $\Delta E_{ef} \leq -0.1$ である化合物 D ~ E を用いた試料 304 ~ 309 の有機電界発光素子は、発光ユニット 3 が単層構造である試料 314, 315 と比較して、外部量子効率 (E Q E) および寿命とも 2 倍 ~ 3 倍以上に向上していることが確認された。

[0471] これに対して、積層された発光ユニット 3-1, 3-2, 3-3間および上部に、銀 (A g) を主成分としない透明導電層 1 b を設けた試料 310 ~ 313 の有機電界発光素子は、外部量子効率 (E Q E) は高いものの、寿命の向上が 1.5 倍程度かまたは劣化していた。

[0472] 特に、透明導電層 1 b-1, 1 b-2, 1 b-3 として I T O を用いた試料 312, 313 では、 ± 2.5 V で駆動した場合の整流比が高くリーク電流が発生していることも確認された。さらに透明導電層 1 b-1, 1 b-2, 1 b-3 として、成膜速度 = 0.1 nm/sec で形成した I T O を用いた試料 313 では、発光を得ることができなかった。

[0473] 以上により、本発明構成の透明導電層を用いたタンデム構造の有機電界発光素子は、発光効率の向上と寿命特性の向上との両立を図ることが可能であることが確認された。

実施例 4

[0474] ≪ 2 層タンデム：トップエミッション型の有機電界発光素子の作製 ≫

図 15 に示すように、試料 401 ~ 413 として、2 層タンデム：トップエミッション型の有機電界発光素子を作製した。また図 16 に示すように、試料 414, 415 として、単層構造のトップエミッション型の有機電界発光

素子を作製した。尚、下記表 4 には、試料 4 0 1 ～ 4 1 5 の主要部の構成を示した。

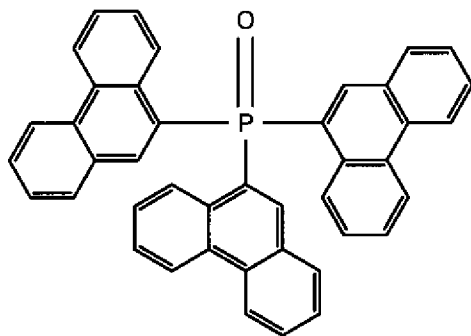
[0475] <試料 4 0 1 ～ 4 0 8 の作製>

図 1 5 を参照し、先ず 5 0 m m × 5 0 m m で厚さ 0. 7 m m の透明なガラス製の基板 1 1 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。洗浄した基板 1 1 を、真空蒸着装置の第 2 真空槽内に移送し、第 2 真空槽内に取り付けられたアルミニウムの入った加熱ボートに通電して加熱した。これにより、蒸着速度 0. 3 n m / 秒で膜厚 1 3 0 n m のアルミニウムからなる第 1 電極 5 を形成した。この第 1 電極 5 は、陽極として用いられる。

[0476] この上部に、先ず実施例 2 の試料 2 0 1 ～ 2 0 8 の発光ユニットの形成と同様にして、第 1 層目の発光ユニット 3-1 を形成した。ただし各試料 4 0 1 ～ 4 0 8 のそれぞれにおいて、発光ユニット 3-1 の最上層を構成する電子輸送・注入層の形成においては、フッ化カリウムと共に、下記表 4 に示すそれぞれの窒素を含有する化合物を用い、窒素含有層 1 a-1 を形成した。ただし、試料 4 0 1 においては窒素含有層 1 a-1 に換えて、窒素を含有しない下記化合物 X を用いた層を形成した。

[0477] [化 76]

化合物 X



[0478] 次に、実施例 2 の試料 2 0 1 ～ 2 0 8 の透明導電層の形成と同様にして、銀 (A g) で構成された第 1 層目の透明導電層 1 b-1 を形成した。膜厚は 6

、5 nmとした。

[0479] その後、各試料401～408の作製において、上述した第1層目の発光ユニット3-1の形成工程～第1層目の透明導電層1b-1の形成工程までを、繰り返して行った。これにより、2層目の発光ユニット3-2、2層目の透明導電層1b-2を形成した。ただし、2層目の発光ユニット3-2における窒素含有層1a-2の形成には、下記表4に示すそれぞれの窒素を含有する化合物を用いた。また、2層目の透明導電層1b-2は、膜厚8.4 nmとし、陰極となる第2電極7として形成した。

[0480] 以上により、基板11上に2層タンデムのトップエミッション型の有機電界発光素子を形成した。その後は、実施例2と同様に有機電界発光素子を封止した。

[0481] <試料409～411の作製>

上述した試料401～408の作製において、銀(Ag)で構成された全2層の透明導電層1b-1、1b-2の形成に換えて、マグネシウム(Mg)と銀(Ag)との共蒸着を行った。この際、試料409ではMg : Ag = 45 : 55 (原子数%)、試料410ではMg : Ag = 55 : 45 (原子数%)、試料411ではMg : Ag = 90 : 10 (原子数%)となるように透明導電層1b-1、1b-2を形成した。膜厚は、2層とも8.4 nmとした。これ以外は、試料401～408と同様の手順で有機電界発光素子を作製した。尚、窒素含有層1a-1、1a-2の形成には化合物Dを用いた。

[0482] <試料412、413の作製>

上述した試料401～408の作製において、銀(Ag)で構成された全2層の透明導電層1b-1～1b-2の形成に換えて、ITOのスputタ成膜を行った。この際、ITOの成膜速度を0.01 nm/secとし、膜厚120 nmのITOからなる透明導電層1b-1～1b-2を形成した。これ以外は、試料401～408と同様の手順で有機電界発光素子を作製した。尚、窒素含有層1a-1、1a-2の形成には、試料412では化合物Eを用い、試料413では化合物Cを用いた。

[0483] <試料 4 1 4, 4 1 5 の作製>

図 1 6 に示すように、比較として単層構造のトップエミッション型の有機電界発光素子を作製した。この際、先ず、上述した試料 4 0 1 ~ 4 0 8 で説明したと同様に、アルミニウムで構成された第 1 電極 5 (陽極) 上に、発光ユニット 3 を形成し、さらに透明導電層 1 b を形成した。尚、発光ユニット 3 の最上層を構成する窒素含有層 1 a としては、試料 4 1 4 では化合物 A を用い、試料 4 1 5 では化合物 F を用いた。また透明導電層 1 b の膜厚は 8.4 nm とした。この透明導電層 1 b は、陰極となる第 2 電極 7 として形成した。

[0484] その後は、実施例 2 と同様に有機電界発光素子を封止した。

[0485] <実施例 4 の各試料の評価 - 1 >

試料 4 0 1 ~ 4 1 5 で作製した有機電界発光素子 (発光パネル) について、発光色度を評価した。その結果、試料 4 0 1 ~ 4 1 5 のうち、試料 4 1 3 以外の全ての素子で発光が確認され、封止基板側 (第 2 電極 7 側) からの 2° 視野角正面輝度 = 400 cd/m^2 での CIE 1931 表色系における色度が、 $X = 0.45 \pm 0.02$ 、 $Y = 0.41 \pm 0.02$ の範囲であり、白色であることを確認した。尚、輝度の測定には分光放射輝度計 CS-1000 (コニカミノルタセンシング製) を用いた。

[0486] <実施例 4 の各試料の評価 - 2 >

試料 4 0 1 ~ 4 1 5 で作製した有機電界発光素子 (発光パネル) について、実施例 2 と同様に、駆動電圧、輝度ムラ、外部量子効率 (EQE)、および寿命を測定した。ただし、駆動電圧、外部量子効率 (EQE)、および寿命については、基板 1 1 と逆の第 2 電極 7 側での正面輝度を 400 cd/cm^2 とした。また、外部量子効率 (EQE) および寿命は、試料 4 1 4 の有機電界発光素子の値を 100 とした時の相対値を算出した。これらの結果を下記表 4 に合わせて示す。

[0487]

[表4]

実施例4《2層タンデム:トップエミッション》

試料	素子構成	第1電極5 (陽極)		窒素含有層1a-1 (発光ユニット3-1)		透明導電層1b-1		窒素含有層1a-2 (発光ユニット3-2)		透明導電層1b-2 (第2電極7:陰極)		評価結果				他	備考		
		材料/膜厚 (nm)	材料	ΔE _{ef}	材料	ΔE _{ef}	材料/製法	膜厚 (nm)	材料	ΔE _{ef}	材料/製法	膜厚 (nm)	駆動電圧 (V)	輝度ムラ	EQE 相対値			寿命 相対値	
401	Fig15	Al/130	化合物X	測定不可	化合物X	測定不可	Ag/蒸着	6.5nm	Ag/蒸着	8.4nm	化合物E	-0.33	Ag/蒸着	8.4nm	12.2	0.27	145	122	比較
402			化合物A	-0.01	化合物A	-0.01					化合物B	-0.03			11.5	0.64	159	142	本発明
403			化合物B	-0.03	化合物B	-0.03					化合物A	-0.01			11.4	0.62	162	153	本発明
404			化合物C	-0.08	化合物C	-0.08					化合物E	-0.33			7.6	0.91	177	181	本発明
405			化合物D	-0.23	化合物D	-0.23					化合物F	-0.34			7.5	0.93	196	203	本発明
406			化合物E	-0.33	化合物E	-0.33					化合物C	-0.08			9.7	0.78	187	193	本発明
407			化合物F	-0.34	化合物F	-0.34					化合物D	-0.23			7.7	0.89	198	201	本発明
408			化合物F	-0.34	化合物F	-0.34					化合物E	-0.33			7.9	0.95	209	199	本発明
409	Fig15	Al/130	化合物D	-0.23	化合物D	-0.23	MgAg(55%) /共蒸着	8.4nm	MgAg(55%) /共蒸着	8.4nm	8.0	0.61	203	182	本発明				
410							MgAg(45%) /共蒸着		MgAg(45%) /共蒸着		7.8	0.52	202	43	寿命劣	比較			
411							MgAg(10%) /共蒸着		MgAg(10%) /共蒸着		7.8	0.49	202	39	寿命劣	比較			
412	Fig15	Al/130	化合物E	-0.33	化合物E	-0.33	ITO/スパッタ	120nm	ITO/スパッタ	120nm	8.1	0.56	203	102	リーク 発生	比較			
413			化合物C	-0.08	化合物C	-0.08					-	-	-	リーク 発生	比較				
414	Fig16	Al/130	-	-	-	-	Ag蒸着	8.4nm	-	0.64	100	100	比較						
415			-	-	-	-			-	0.95	121	113	比較						

[0488] <実施例4の各試料の評価結果>

表4から明らかなように、積層された発光ユニット3-1、3-2間および上部に、窒素含有層1aに隣接させた状態で銀(Ag)を主成分(50%以上

）とした透明導電層 1 b-1, 1 b-2を配置した試料 4 0 2 ~ 4 0 9 の有機電界発光素子は、発光ユニット 3 が単層構造である試料 4 1 4, 4 1 5 と比較して、外部量子効率 (EQE) および寿命の両方ともが 1. 4 倍以上向上していることが確認された。

[0489] このうち特に、窒素含有層 1 a に用いられる窒素原子を含有する化合物として、有効作用エネルギー ΔE_{ef} が $\Delta E_{ef} \leq -0.1$ である化合物を用いた試料 4 0 5 ~ 4 0 9 の有機電界発光素子は、輝度ムラが低く抑えられていると共に、発光ユニット 3 が単層構造である試料 4 1 4, 4 1 5 と比較して、外部量子効率 (EQE) および寿命とも 2 倍近く向上していることが確認された。

[0490] これに対して、積層された発光ユニット 3-1, 3-2間および上部に、銀 (Ag) を主成分としない透明導電層 1 b-1, 1 b-2を設けた試料 4 1 0 ~ 4 1 3 の有機電界発光素子は、発光ユニット 3 が単層構造である試料 4 1 4, 4 1 5 と比較して、外部量子効率 (EQE) は高いものの、寿命特性が同程度かまたは劣化していた。特に、透明導電層 1 b-1, 1 b-2としてITOを用いた試料 4 1 2, 4 1 3 では、 ± 2.5 V で駆動した場合の整流比が高くリーク電流が発生していることも確認された。またこのうち試料 4 1 3 の有機電界発光素子では、発光を得ることができなかった。

[0491] さらに、透明導電層 1 b-1, 1 b-2に隣接させて、窒素含有層 1 a-1, 1 a-2に換えて窒素を含有していない化合物 X を用いた層を形成した試料 4 0 1 の有機電界発光素子では、外部量子効率 (EQE) および寿命の両方が向上しているものの、1. 2 倍程度でしかなかった。

[0492] 以上により、本発明構成の透明導電層 1 b-1, 1 b-2を用いたタンデム構造の有機電界発光素子は、発光効率の向上と寿命特性の向上との両立を図ることが可能であることが確認された。

実施例 5

[0493] ≪ 3 色・3 層タンデム：両面発光型の有機電界発光素子の作製 ≫

図 1 7 に示すように、試料 5 0 1 ~ 5 1 1 として、3 色・3 層タンデム：

両面発光型の有機電界発光素子を作製した。尚、下記表5には、試料501～511の主要部の構成を示した。

[0494] <試料501～508の作製>

図17を参照し、先ず実施例2の試料201～208と同様に、膜厚180nmのITOで構成された第1電極5を陽極として形成し、これを洗浄した。

[0495] 次に、実施例2の試料201～208と同様に、第1電極5の上部に、第1層目の発光ユニット3-1を形成した。ただし、発光層の形成において、試料501, 503, 505, 507では、先に構造式を示したホスト材料H4と燐光発光性化合物Ir-9（赤：R）とを用い、蒸着速度をH4：Ir-9=98.9：1.1（体積比）として赤色の発光層を膜厚10nmで形成した。また試料502, 504, 506, 508では、先に構造式を示したホスト材料H4と燐光発光性化合物Ir-4（青：B）とを用い、蒸着速度をH4：Ir-4=92.6：7.4（体積比）として青色の発光層を膜厚10nmで形成した。

[0496] また、各試料501～508のそれぞれにおいて、発光ユニット3-1の最上層を構成する電子輸送・注入層（窒素含有層1a-1）の形成においては、フッ化カリウムと共に、下記表5に示すそれぞれの窒素を含有する化合物を用いた。

[0497] 次に、実施例2の試料201～208の透明導電層の形成と同様にして、銀（Ag）で構成された第1層目の透明導電層1b-1を形成した。膜厚は6.0nmとした。

[0498] その後、上述した発光ユニット3-1の形成工程～第1層目の透明導電層1b-1の形成工程までを繰り返すことにより、透明導電層1b-1上に2層目の発光ユニット3-2を形成し、さらに第2層目の透明導電層1b-2を形成した。ただし、発光ユニット3-2における発光層の形成においては、先に構造式を示したホスト材料H4と燐光発光性化合物Ir-1（緑：G）とを用い、蒸着速度をH4：Ir-1=95.5：4.5（体積比）として緑色の発光

層を膜厚 10 nm で形成した。

[0499] 次に、上述した発光ユニット 3-1 の形成工程～第 1 層目の透明導電層 1 b-1 の形成工程までを繰り返すことにより、透明導電層 1 b-2 上に 3 層目の発光ユニット 3-3 を形成し、さらに第 3 層目の透明導電層 1 b-3 を形成した。3 層目の透明導電層 1 b-3 は、陰極となる第 2 電極 7 として形成した。ただし、発光ユニット 3-3 における発光層の形成においては、試料 501, 503, 505, 507 では青色 (B) の発光層を膜厚 10 nm で形成し、試料 502, 504, 506, 508 では赤色 (R) の発光層を膜厚 10 nm で形成した。また、透明導電層 1 b-3 は、膜厚 8.4 nm で形成した。

[0500] 以上により、基板 11 上に 3 色・3 層タンデムの両面発光型の有機電界発光素子を形成した。その後は、実施例 2 と同様に有機電界発光素子を封止した。

[0501] 尚、有機電界発光素子の形成においては、各層の形成に蒸着マスクを使用し、5 cm × 5 cm の基板 13 における中央の 4.5 cm × 4.5 cm を発光領域 A とし、発光領域 A の全周に幅 0.25 cm の非発光領域を設けた。また、陽極である第 1 電極と、陰極である第 2 電極 7 (第 3 層目の透明導電層 1 b-3) と共に、第 1 層目の透明導電層 1 b-1 および第 2 層目の透明導電層 1 b-2 も、発光ユニット 3-1 ~ 3-3 によって絶縁された状態で、基板 11 の周縁に端子部分を引き出された形状で形成した。

[0502] <試料 509 ~ 511 の作製>

上述した試料 501 ~ 508 の作製において、銀 (Ag) で構成された全 3 層の透明導電層 1 b-1 ~ 1 b-3 の形成に換えて、マグネシウム (Mg) と銀 (Ag) との共蒸着を行った。この際、試料 509 では Mg : Ag = 45 : 55 (原子数%)、試料 510 では Mg : Ag = 55 : 45 (原子数%)、試料 511 では Mg : Ag = 90 : 10 (原子数%) となるように透明導電層 1 b-1 ~ 1 b-3 を形成した。膜厚は、第 1 層目および第 2 層目の透明導電層 1 b-1, 1 b-2 を 6.0 nm とし、第 3 層目の透明導電層 1 b-3 を 8.4 nm とした。これ以外は、試料 501 と同様の手順で有機電界発光素子を

作製した。尚、各発光ユニット3-1～3-3の最上層を構成する窒素含有層1a-1～1a-3としては、化合物Eを用いた。

[0503] <実施例5の各試料の評価－1>

試料501～511で作製した有機電界発光素子（発光パネル）について、発光色度を評価した。この結果を下記表5に示す。

[0504]

[表5]

実施例5《3色・3層タンデム：両面発光》

試料	素子構成	第1電極5		発光ユニット3-1		透明導電層1b-1		発光ユニット3-2		透明導電層1b-2		発光ユニット3-3		透明導電層1b-3 (第2電極7：陰極)		発光色	他	備考				
		材料/膜厚 (nm)	発光層 ト-ハント	材料	∠Eof	材料/製法	膜厚 (nm)	発光層 ト-ハント	材料	∠Eof	材料/製法	膜厚 (nm)	発光層 ト-ハント	材料	∠Eof				材料/製法	膜厚 (nm)		
501	Fig17	ITO/180	R	化合物B	-0.03	Ag/蒸着	60nm	G	化合物B	-0.03	Ag/蒸着	60nm	B	化合物B	-0.03	Ag/蒸着	84nm	赤		本発明		
502			B							R			R		黄					本発明		
503			R	化合物D	-0.23				化合物D	-0.23			B	化合物D	-0.23			白色			本発明	
504			B							R			R		白色					本発明		
505			R	化合物E	-0.33				化合物E	-0.33			B	化合物E	-0.33			白色			本発明	
506			B							R			R		白色					本発明		
507			R	化合物G	-0.41				化合物G	-0.41			B	化合物G	-0.41			淡橙			本発明	
508			B							R			R		淡青						本発明	
509	Fig17	ITO/180	R	化合物E	-0.33	MgAg(55%) /共蒸着	60nm	G			MgAg(55%) /共蒸着	60nm	B			MgAg(55%) /共蒸着	84nm	白色		本発明		
510										MgAg(45%) /共蒸着	化合物E			-0.33	MgAg(45%) /共蒸着	化合物E		-0.33	MgAg(45%) /共蒸着	白色	寿命劣	比較
										MgAg(10%) /共蒸着					MgAg(10%) /共蒸着				MgAg(10%) /共蒸着	白色	寿命劣	比較
511																	白色	寿命劣	比較			

実施例5《3色・3層タンデム:両面発光》

[0505] この際、試料503～506、509～511においては、第1電極5(陽極)－透明導電層1b-1(陰極)間に駆動電圧 $V1 = 4V$ 、透明導電層1b-1

(陽極)－透明導電層 1 b-2 (陰極) 間に駆動電圧 $V_2 = 4\text{ V}$ 、透明導電層 1 b-2 (陽極)－透明導電層 1 b-3 (第2電極 7 : 陰極) 間に駆動電圧 $V_3 = 4\text{ V}$ を印加し、駆動電圧 V_1 、 V_2 、 V_3 を 4 V から各々を微調整することで、いずれも、CIE 1931 表色系の色度が $X = 0.45 \pm 0.02$ 、 $Y = 0.41 \pm 0.02$ の白色の範囲に入ることを確認した。

[0506] 一方、試料 501、502、507、508 はいずれも、駆動電圧 V_1 、 V_2 、 V_3 を 4 V からどのように調整しても、発光色が前記の色度範囲の白色光を得ることはなかった。

[0507] また試料 503～506、509～511 においては、駆動電圧 V_1 、 V_2 、 V_3 の電圧各々を大きく上下することで、様々な発光色を得ることを確認することができた。

実施例 6

[0508] 《逆積み・2層タンデム：両面発光型の有機電界発光素子の作製》

図 18 に示すように、試料 601～606 として、逆積み・2層タンデム：両面発光型の有機電界発光素子を作製した。尚、下記表 6 には、試料 601～606 の主要部の構成を示した。

[0509] <試料 601～606 の作製>

図 18 を参照し、先ず実施例 2 の試料 201～208 と同様に、ITO で構成された第 1 電極 5 を陽極として形成し、これを洗浄した。

[0510] 次に、実施例 2 の試料 201～208 と同様に、第 1 電極 5 の上部に、第 1 層目の発光ユニット 3-1 を形成した。ただし、発光層の形成においては、先に構造式を示したホスト材料 H4 と燐光発光性化合物 Ir-9 (赤：R) とを用い、蒸着速度を $H4 : Ir-9 = 98.9 : 1.1$ (体積比) として赤色の発光層を膜厚 10 nm で形成した。また各試料 601～606 のそれぞれにおいて、発光ユニット 3-1 の最上層を構成する電子輸送・注入層の形成においては、フッ化カリウムと共に、下記表 6 に示すそれぞれの窒素を含有する化合物を用い、窒素含有層 1a を形成した。

[0511] 次に、実施例 2 の試料 201～208 の透明導電層の形成と同様にして、

銀（A g）で構成された第1層目の透明導電層1 b-1を形成した。この際、透明導電層1 b-1の膜厚は8.4 nmとした。

[0512] その後、透明導電層1 b-1上に、第2層目の発光ユニット3-2を形成した。発光ユニット3-2は、第1層目の発光ユニット3-1とは逆の積層順とし、透明導電層1 b-1側から電子輸送・注入層、正孔阻止層、発光層、正孔輸送層、正孔注入材料を形成した。ただし、発光層の形成においては、先に構造式を示したホスト材料H 4と燐光発光性化合物I r-4（青：B）とを用い、蒸着速度をH 4：I r-4=92.6：7.4（体積比）として青色の発光層を膜厚10 nmで形成した。

[0513] 次に、実施例2の試料201～208の透明導電層の形成と同様にして、銀（A g）で構成された第2層目の透明導電層1 b-2を第2電極7として形成した。ここでは透明導電層1 b-2（第2電極7）を陽極として形成した。この際、透明導電層1 b-2（第2電極7）の膜厚は7.8 nmとした。

[0514] 以上により、基板11上に逆積み・2層タンデムの両面発光型の有機電界発光素子を形成した。その後は、実施例2と同様に有機電界発光素子を封止した。

[0515] 尚、有機電界発光素子の形成においては、各層の形成に蒸着マスクを使用し、5 cm×5 cmの基板13における中央の4.5 cm×4.5 cmを発光領域Aとし、発光領域Aの全周に幅0.25 cmの非発光領域を設けた。また、陽極である第1電極および第2電極7（第2層目の透明導電層1 b-2）と共に、陰極として用いる第1層目の透明導電層1 b-1も、発光ユニット3-1、3-2によって絶縁された状態で、基板11の周縁に端子部分を引き出された形状で形成した。

[0516] <実施例6の各試料の評価>

試料601～606で作製した有機電界発光素子（発光パネル）について、第1電極5側の輝度、第2電極側の輝度、および発光色を評価した。この際、各有機電界発光素子に対して下記表6に示すように、第1電極5（陽極）－透明導電層1 b-1（陰極）間に駆動電圧V1を印加し、透明導電層1 b-1

(陰極)－透明導電層 1 b-2 (第 2 電極 7 : 陽極) 間に駆動電圧 V_2 に印加して発光を得た。第 1 電極 5 側の輝度、第 2 電極側の輝度は、 2° 視野角正面輝度を測定し、試料 601 の第 1 電極 5 側の正面輝度を 100 とした相対値を算出した。また、発光色は目視による色調で判断した。尚、輝度の測定には分光放射輝度計 CS-1000 (コニカミノルタセンシング製) を用いた。以上の結果を下記表 6 に示す。

[0517]

[表6]

実施例6《逆積み・2層タンデム：両面発光》																									
試料	素子構成	第1電極5 (陽極)		発光ユニット3-1		透明導電層1b-1 (陰極)		発光ユニット3-2	透明導電層1b-2 (第2電極7：陽極)		駆動電圧 (V)		評価結果			備考									
		材料/膜厚 (nm)	発光層 ドーパント	窒素含有層1a	材料	∠E _{ef}	材料/製法		膜厚 (nm)	材料/製法	膜厚 (nm)	V1	V2	第1電極5側 輝度相対値	第2電極7側 輝度相対値		発光色								
601	Fig18	ITO/180	R	化合物A	-0.01		Ag/蒸着	8.4	B	Ag/蒸着	7.8	5.0	5.0	100	45	赤	本発明								
602												7.0	3.0	134	4	赤		本発明							
603				化合物D	-0.23							3.0	7.0	39	78	青紫			本発明						
												5.0	5.0	145	126	白				本発明					
604												7.0	3.0	203	86	赤			本発明						
605												3.0	7.0	102	159	青紫				本発明					
606																									

[0518] <実施例6の各試料の評価結果>

表6から明らかなように、本発明構成の窒素含有層1a-1に隣接する透明導電層1b-1を有するタンデム構造の有機電界発光素子は、それぞれを構成す

る各層の積層順を逆とした発光ユニット 3-1, 3-2を用いた場合であっても、発光が得られることが確認された。

[0519] またこれら試料 601～606の有機電界発光素子は、駆動電圧 V1、V2を調整することにより、広い色域で発光色を制御できることが確認された。

符号の説明

[0520] 1a, 1a-1, 1a-2, 1a-3…窒素含有層、1b, 1b-1, 1b-2, 1b-3…透明導電層（導電層）、3, 3-1, 3-2, 3-3…発光ユニット、5…第1電極、7…第2電極層、EL-1, EL-1', EL-1'', EL-2, EL-3, EL-4, EL-5, EL-6…有機電界発光素子

請求の範囲

[請求項1]

一対の電極と、
 有機材料を用いて構成された発光層を有して前記電極間に重ねて配置された複数の発光ユニットと、
 前記発光ユニット間に配置された導電層とを備え、
 前記電極および前記導電層のうちの少なくとも1つは、
 銀または銀を主成分とした合金を用いた透明導電層として構成されると共に、窒素原子を含有する化合物を用いて構成された窒素含有層に隣接して配置されている
 有機電界発光素子。

[請求項2]

前記化合物は、下記式（1）で表される銀との有効作用エネルギー ΔE_{ef} が下記式（2）を満たす
 請求項1に記載の有機電界発光素子。

[数1]

$$\Delta E_{ef} = n \times \Delta E / s \quad \cdots \text{式 (1)}$$

n : 銀 (Ag) と安定的に結合する化合物中の窒素原子 (N) の数

ΔE : 窒素原子 (N) と銀 (Ag) との相互作用エネルギー

s : 化合物の表面積

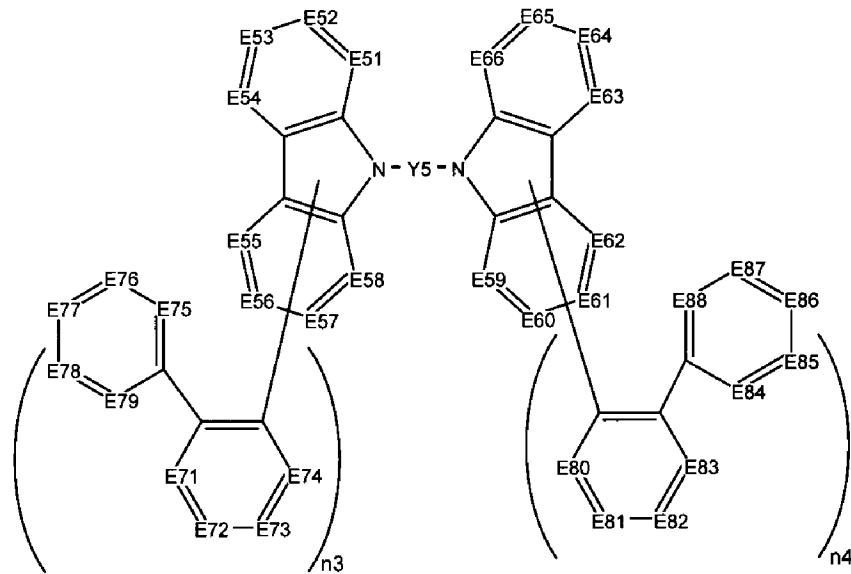
$$-0.5 \leq \Delta E_{ef} \leq -0.10 [\text{kcal/mol} \cdot \text{\AA}^2] \quad \cdots \text{式 (2)}$$

[請求項3]

前記化合物は、下記一般式（1）で表される化合物を含む
 請求項1または2に記載の有機電界発光素子。

[化1]

一般式(1)



〔ただし一般式(1)中、Y5は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基またはそれらの組み合わせからなる2価の連結基を表す。〕

E51～E66、E71～E88は、各々C(R3)=または-N=を表し、R3は水素原子または置換基を表す。

またE71～E79の少なくとも1つおよびE80～E88の少なくとも1つは-N=を表す。n3およびn4は0～4の整数を表すが、n3+n4は2以上の整数である。〕

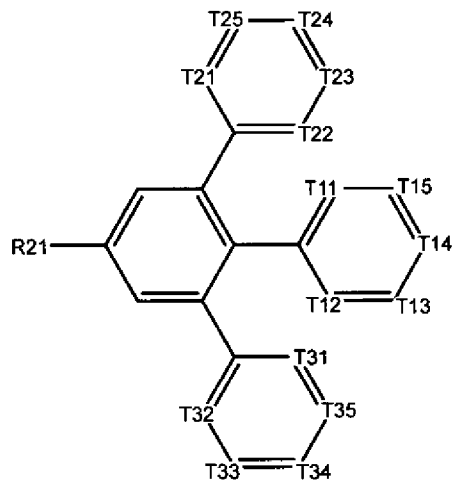
[請求項4]

前記化合物は、下記一般式(2)で表される化合物を含む

請求項1または2に記載の有機電界発光素子。

[化2]

一般式(2)



〔ただし一般式(2)中、

R 2 1 は置換基を表し、

T 1 1, T 1 2、T 2 1 ~ T 2 5、T 3 1 ~ T 3 5 は、各々-C (R 2 2) = または-N = を表し、

T 1 3 ~ T 1 5 は、各々-C (R 2 2) = を表し、

前記 R 2 2 は、水素原子 (H) または置換基を表し、

T 1 1 および T 1 2 のうち少なくとも 1 つは-N = であり、

T 2 1 ~ T 2 5 のうち少なくとも 1 つは-N = であり、

T 3 1 ~ T 3 5 のうち少なくとも 1 つは-N = である。〕

[請求項5]

前記一対の電極のみに電圧を印加して駆動される

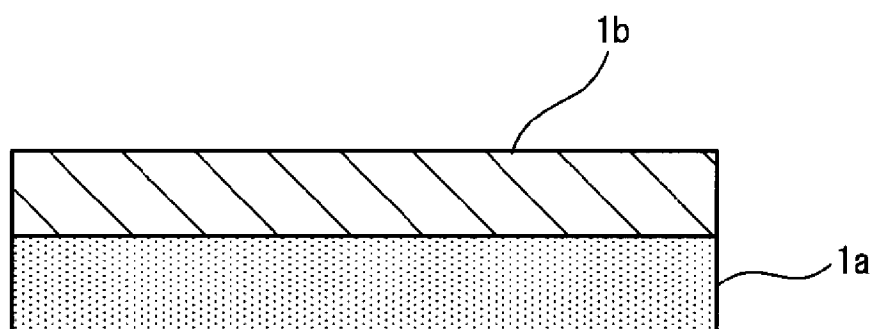
請求項 1 ~ 4 の何れかに記載の有機電界発光素子。

[請求項6]

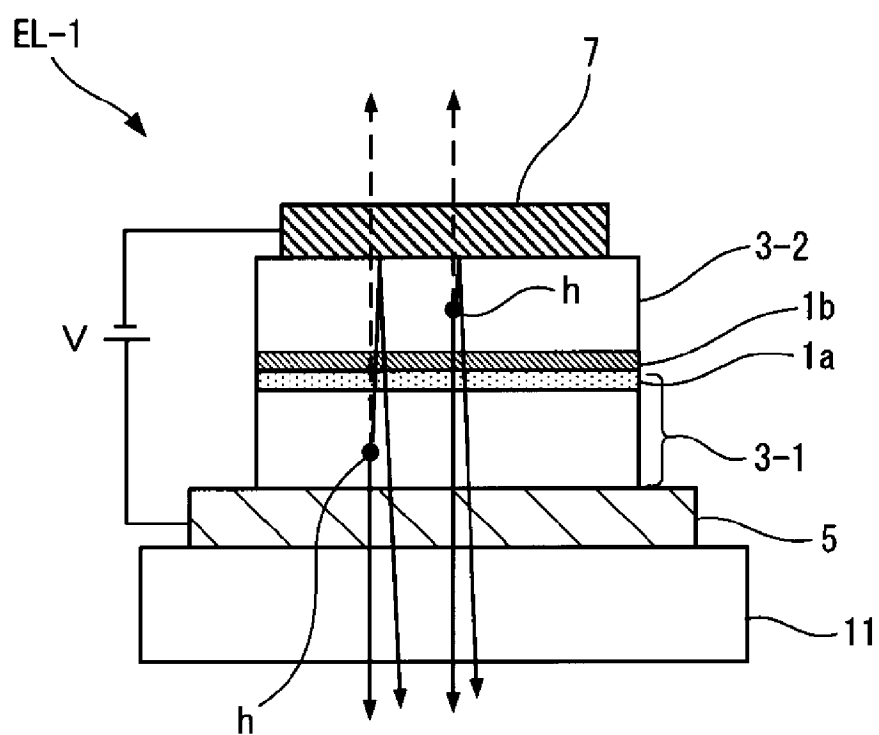
前記一対の電極および前記導電層に電圧を印加して駆動される

請求項 1 ~ 4 の何れかに記載の有機電界発光素子。

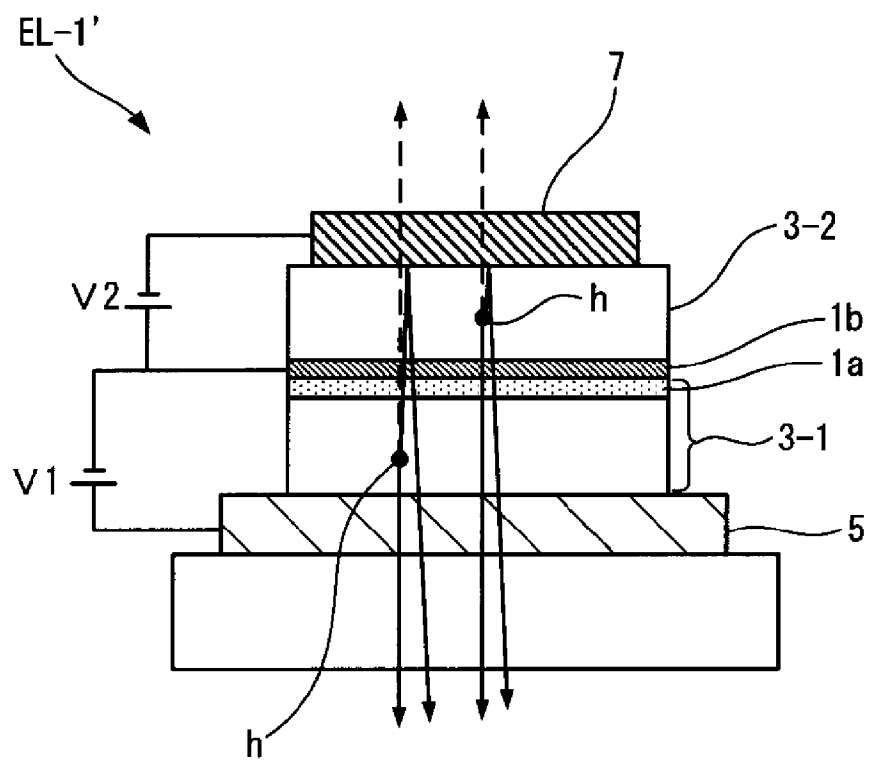
[図1]

FIG. 1

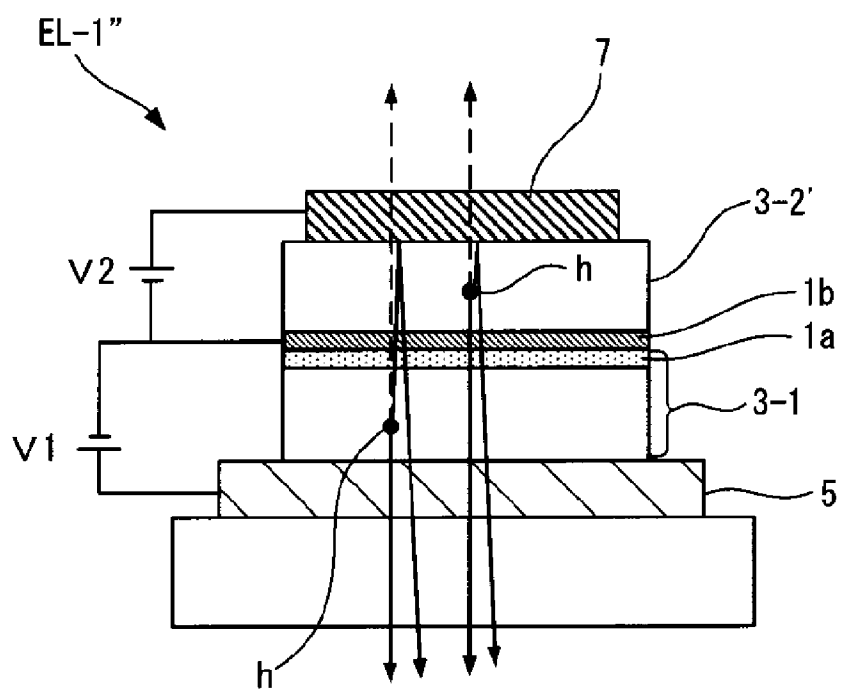
[図2]

FIG. 2

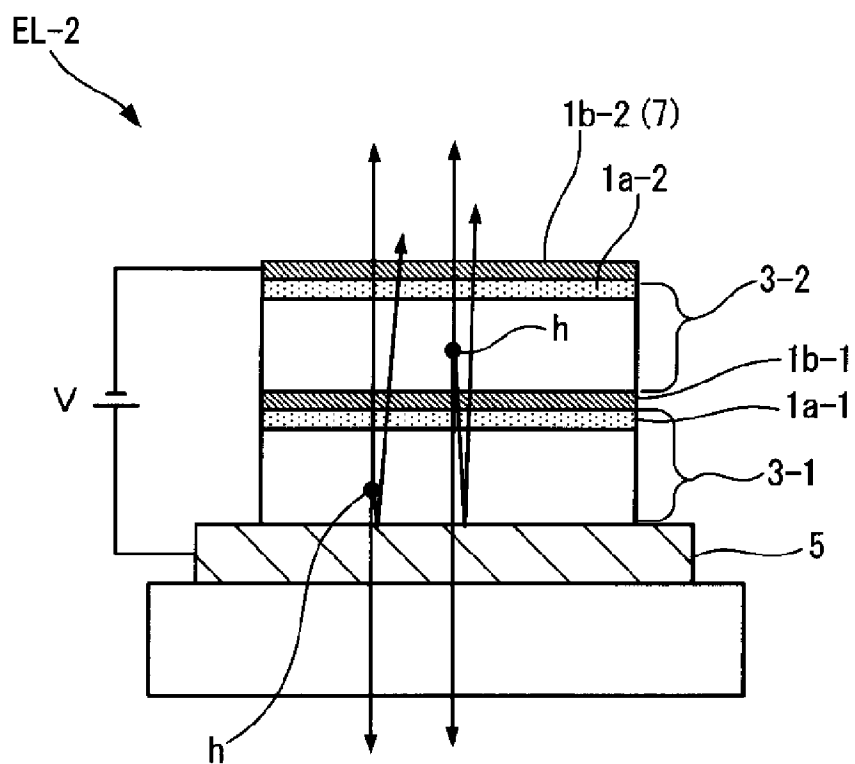
[図3]

FIG. 3

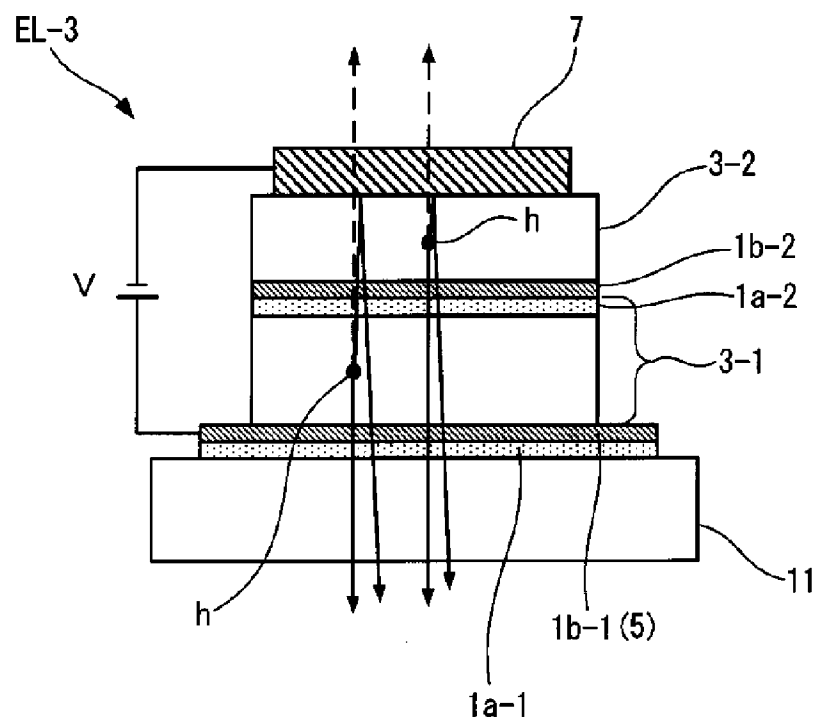
[図4]

FIG. 4

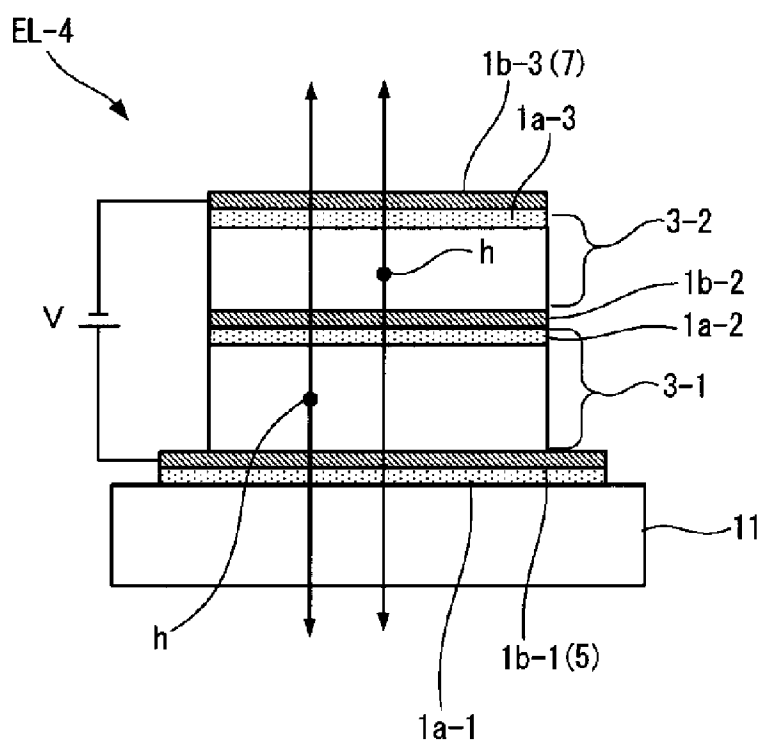
[図5]

FIG. 5

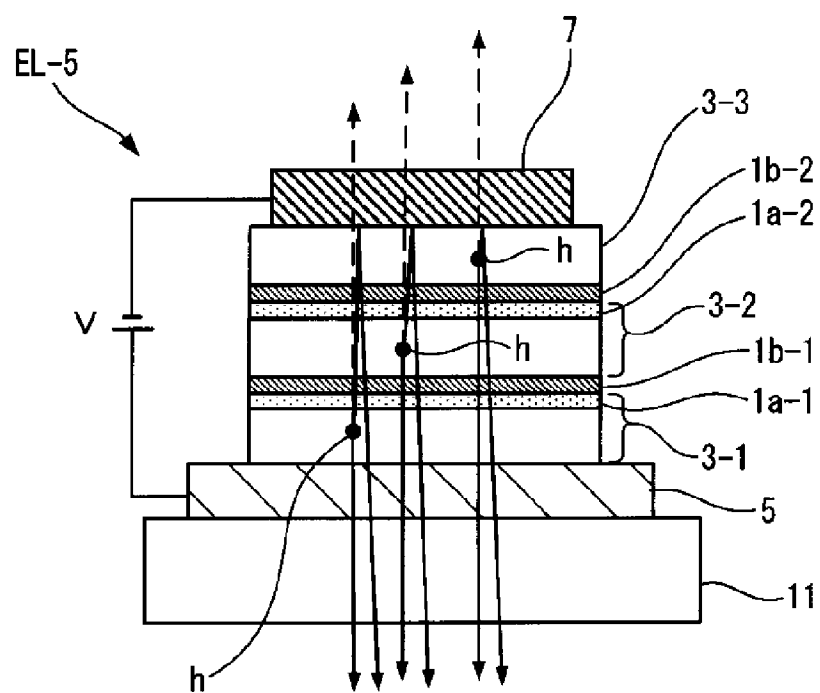
[図6]

FIG. 6

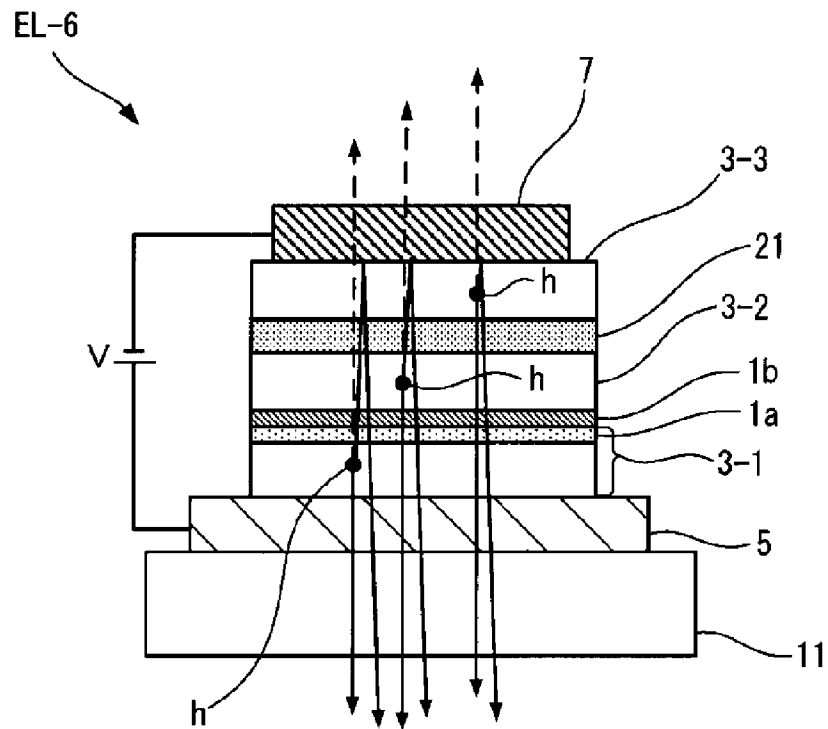
[図7]

FIG. 7

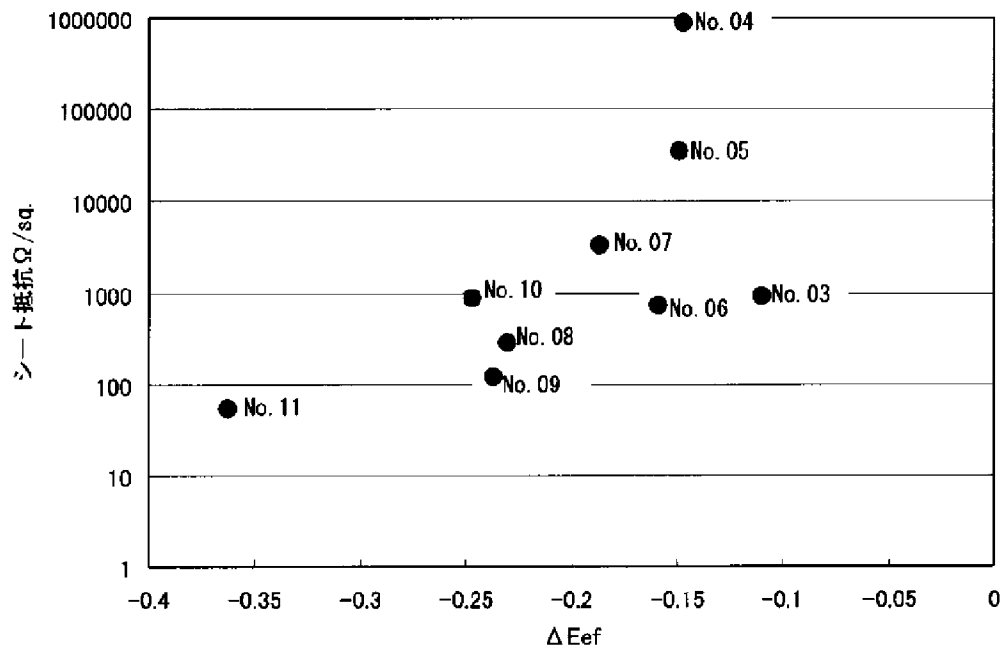
[図8]

FIG. 8

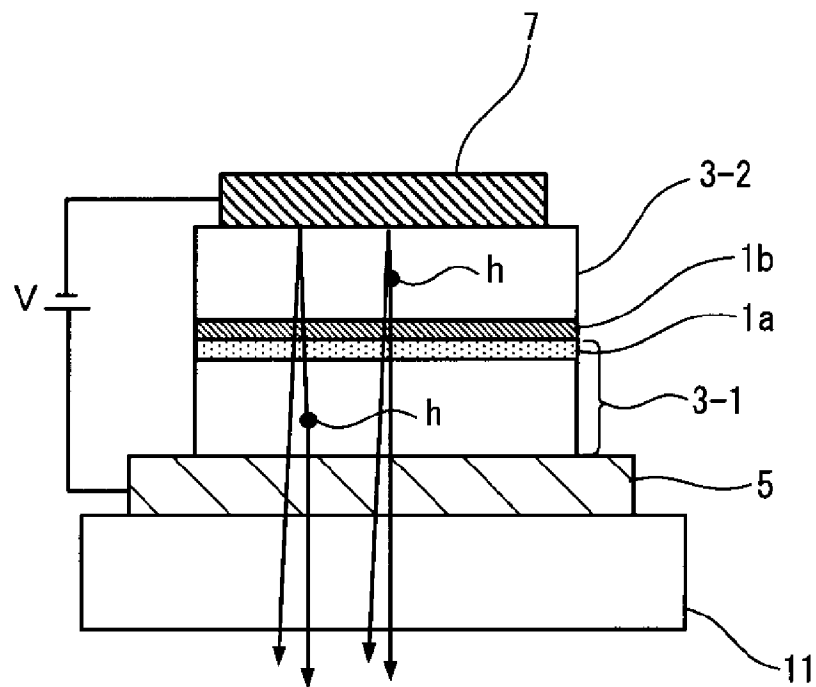
[図9]

FIG. 9

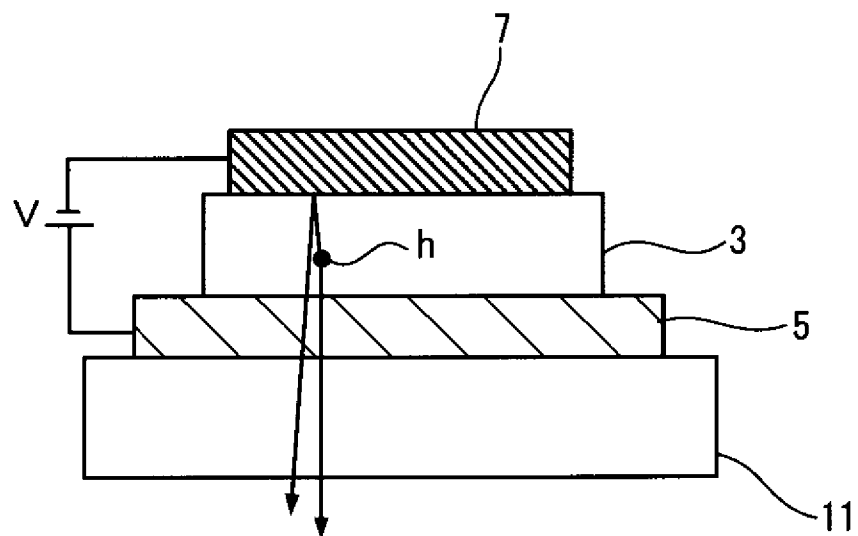
[図10]

FIG. 10

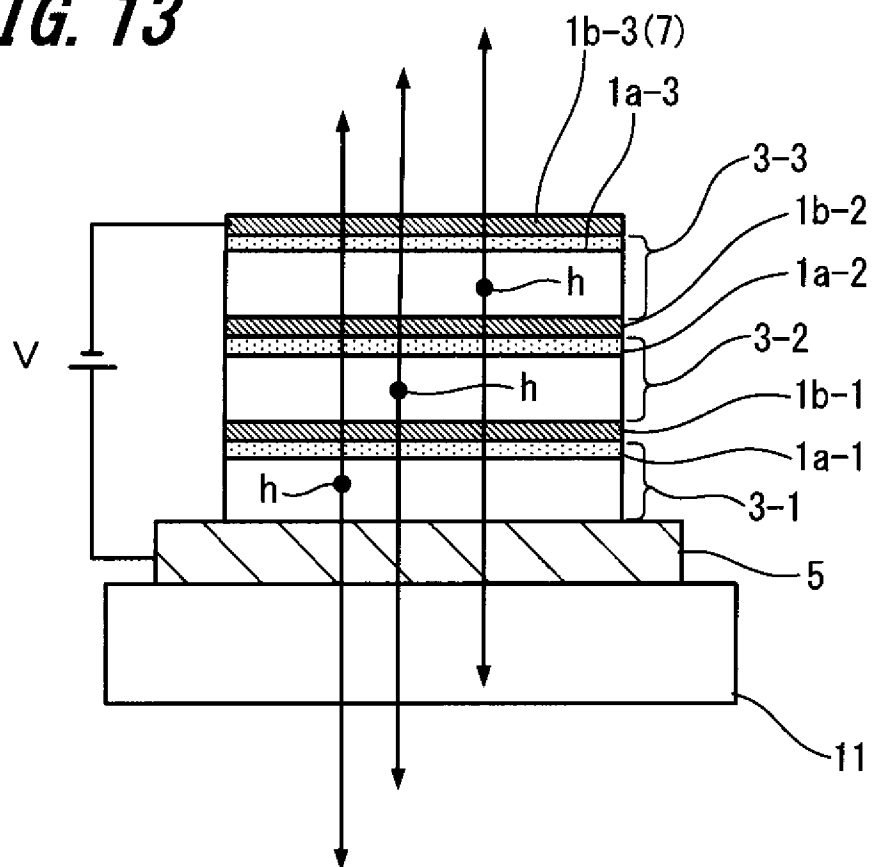
[図11]

FIG. 11

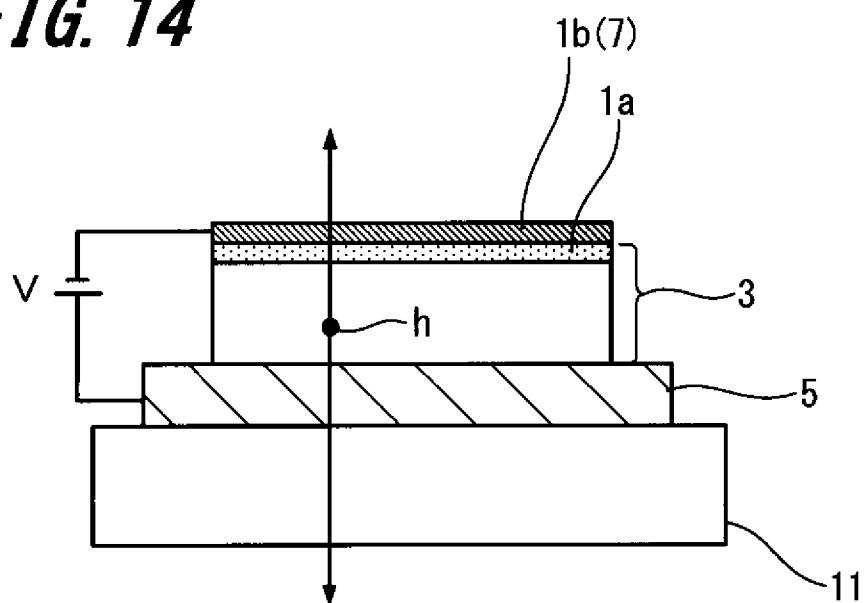
[図12]

FIG. 12

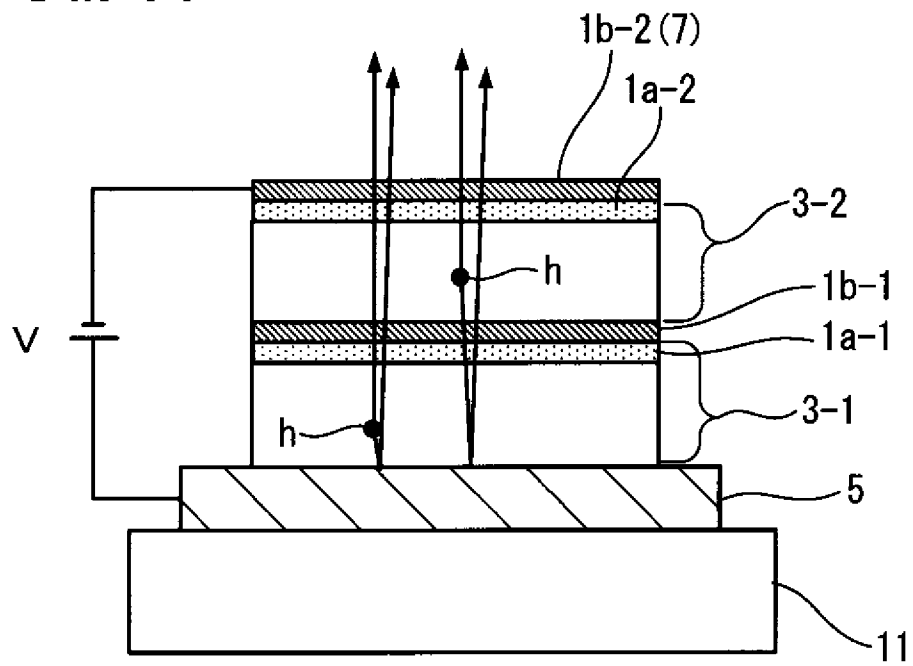
[図13]

FIG. 13

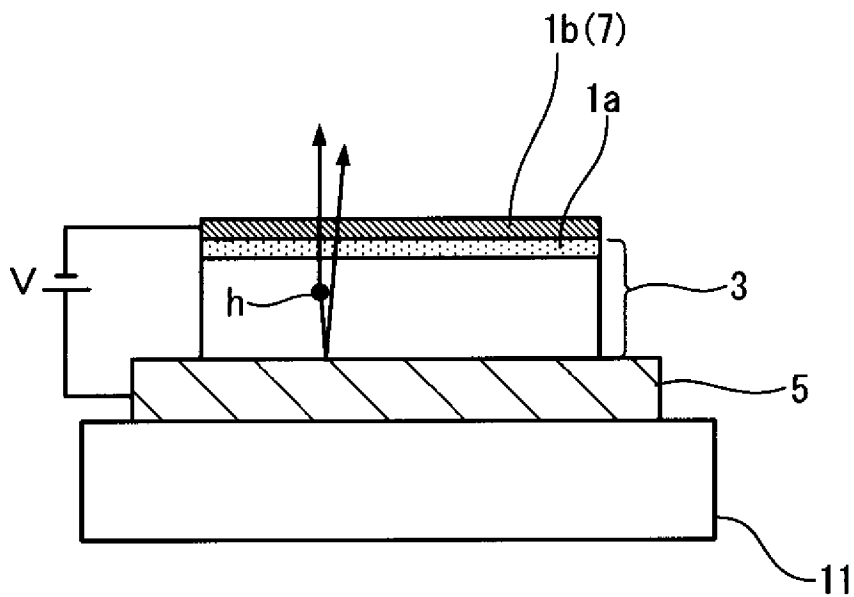
[図14]

FIG. 14

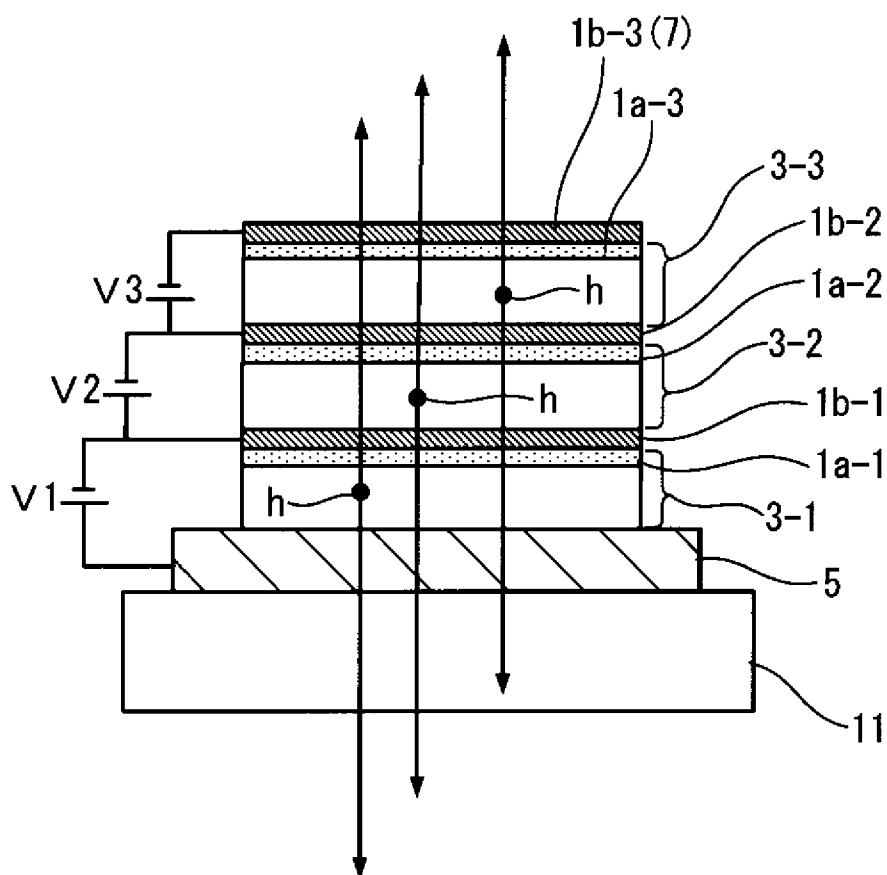
[図15]

FIG. 15

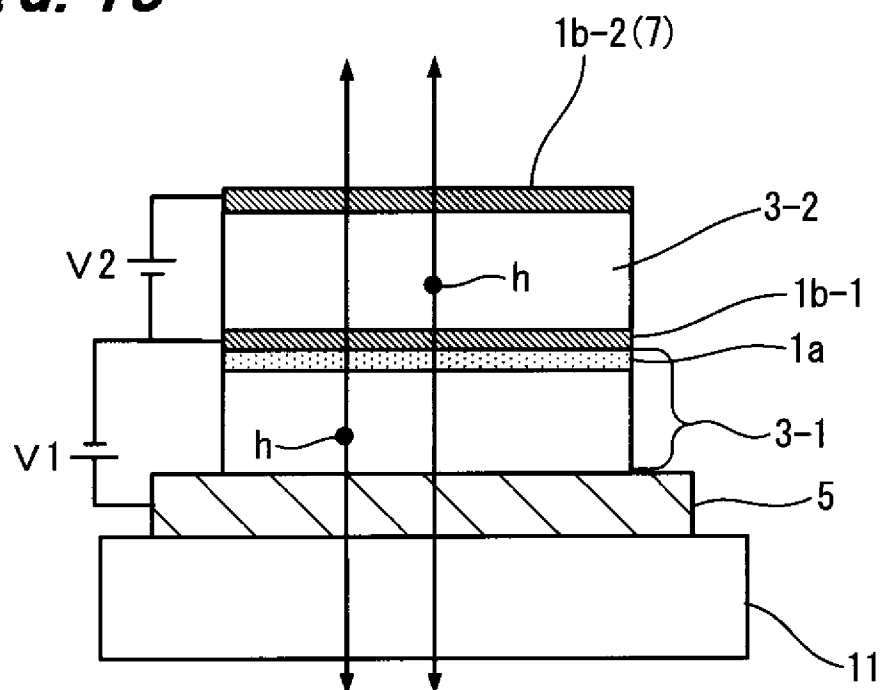
[図16]

FIG. 16

[図17]

FIG. 17

[図18]

FIG. 18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/056616

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/12(2006.01)i, C07D213/06(2006.01)i, C07D213/22(2006.01)i,
C07D213/53(2006.01)i, C07D401/14(2006.01)i, C07D409/14(2006.01)i,
C07D519/00(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/28(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)

H05B33/12, C07D213/06, C07D213/22, C07D213/53, C07D401/14, C07D409/14,
C07D519/00, H01L51/50, H05B33/28

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	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

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.
Y	JP 2011-77028 A (Hitachi Displays, Ltd.), 14 April 2011 (14.04.2011), paragraphs [0024], [0035], [0036], [0080], [0084], [0086]; fig. 1A & US 2011/0057920 A1	1-6
Y	JP 2005-100921 A (Sony Corp.), 14 April 2005 (14.04.2005), paragraphs [0047] to [0049]; fig. 3 & US 2006/0227079 A1 & EP 1667494 A1 & WO 2005/027586 A1 & TW 290441 B & KR 10-1108215 B & KR 10-2006-0071399 A & CN 1871877 A	1-5



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
04 June, 2013 (04.06.13)

Date of mailing of the international search report
11 June, 2013 (11.06.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/056616

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 11-329749 A (TDK Corp.), 30 November 1999 (30.11.1999), paragraphs [0015] to [0018], [0045] to [0057] (Family: none)	1-6
X Y	JP 2009-224274 A (Panasonic Electric Works Co., Ltd.), 01 October 2009 (01.10.2009), paragraphs [0052] to [0061]; fig. 1 (Family: none)	1-2, 5 3-4
Y	JP 2010-251675 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 04 November 2010 (04.11.2010), paragraphs [0071], [0134] & US 2012/0261654 A1 & US 2012/0326601 A1 & US 2009/0284138 A1 & EP 2123733 A2 & EP 2460866 A2 & EP 2479234 A1	3
Y	WO 2009/054253 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 30 April 2009 (30.04.2009), paragraphs [0127], [0366] (Family: none)	4

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H05B33/12(2006.01)i, C07D213/06(2006.01)i, C07D213/22(2006.01)i, C07D213/53(2006.01)i,
C07D401/14(2006.01)i, C07D409/14(2006.01)i, C07D519/00(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i,
H05B33/28(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 (I P C))

Int.Cl. H05B33/12, C07D213/06, C07D213/22, C07D213/53, C07D401/14, C07D409/14, C07D519/00, H01L51/50,
H05B33/28

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 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
Y	J P 2 0 1 1 - 7 7 0 2 8 A (株式会社 日立ディスプレイズ) 2 0 1 1 . 0 4 . 1 4、段落【0 0 2 4】、【0 0 3 5】、【0 0 3 6】、【0 0 8 0】、【0 0 8 4】、【0 0 8 6】、図 1 A & US 2011/0057920 A1	1-6
Y	J P 2 0 0 5 - 1 0 0 9 2 1 A (ソニー株式会社) 2 0 0 5 . 0 4 . 1 4、段落【0 0 4 7】乃至【0 0 4 9】、図 3 & US 2006/0227079 A1 & EP 1667494 A1 & WO 2005/027586 A1 & TW 290441 B & KR 10-1108215 B & KR 10-2006-0071399 A & CN 1871877 A	1-5

☒ 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

0 4 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

1 1 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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)

中山 佳美

2 0

3 9 1 1

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 1

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
Y	J P 11-329749 A (ティーディーケイ株式会社) 1999. 1 1. 30、段落【0015】乃至【0018】、【0045】乃至【0057】 (ファミリーなし)	1-6
X	J P 2009-224274 A (パナソニック電工株式会社) 2009. 10. 01、段落【0052】乃至【0061】、図1	1-2、5
Y	(ファミリーなし)	3-4
Y	J P 2010-251675 A (コニカミノルタホールディングス株式 会社) 2010. 11. 04、段落【0071】、【0134】 & US 2012/0261654 A1 & US 2012/0326601 A1 & US 2009/0284138 A1 & EP 2123733 A2 & EP 2460866 A2 & EP 2479234 A1	3
Y	WO 2009/054253 A1 (コニカミノルタホールディングス株 式会社) 2009. 04. 30、段落【0127】、【0366】 (ファミリーなし)	4