

(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
2012 年 8 月 9 日(09.08.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/105310 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/26 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C07D 409/14 (2006.01) H05B 33/22 (2006.01)
C07D 519/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/050841
- (22) 国際出願日: 2012 年 1 月 17 日(17.01.2012)
- (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 2011-020465 2011 年 2 月 2 日(02.02.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタホールディングス株式会社 (KONICA MINOLTA HOLDINGS, INC.) [JP/JP]; 〒1000005 東京都千代田区丸の内一丁目 6 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 波木井 健 (HAKII, Takeshi) [JP/JP]; 〒1918511 東京都日野市さくら町 1 番地 コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人光陽国際特許事務所 (KOYO INTERNATIONAL PATENT FIRM); 〒1620832 東京都新宿区岩戸町 1 8 番地 日交神楽坂ビル 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, 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, 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.
- (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, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

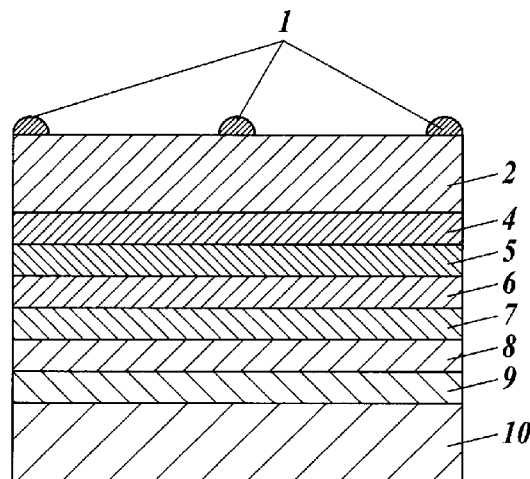
[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT AND ILLUMINATION DEVICE

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子及び照明装置

[図1B]

FIG.1B



(57) Abstract: The present invention provides an organic electroluminescent element and an illumination device having improved luminous efficiency and drive voltage. This organic electroluminescent element is an organic electroluminescent element having at least a transparent electroconductive layer and a luminous layer, the organic electroluminescent element being characterized in having an auxiliary electrode formed by aerosol jet printing.

(57) 要約: 本発明は、発光効率と駆動電圧が改良された有機エレクトロルミネッセンス素子及び照明装置を提供する。本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、少なくとも透明導電性層と発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、エアロゾルジェット印刷法で形成した補助電極を有していることを特徴とする。

WO 2012/105310 A1

WO 2012/105310 A1



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：有機エレクトロルミネッセンス素子及び照明装置 技術分野

[0001] 本発明は、各種ディスプレイ、表示装置および照明等に適用される有機エレクトロルミネッセンス素子及び照明装置に関するものである。

背景技術

[0002] 各種ディスプレイのバックライト、看板や非常灯等の表示板、照明等の光源として用いられる面発光体は、高輝度、高発光効率、薄型、軽量といった多くの優れた特徴を有することから、近年注目されている。このような面発光体の中でも、有機材料を用いて正負の各電極からの電気エネルギーによって発光させる有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子ともいう）は、数V～数十V程度の低電圧で発光が可能であり、薄膜型の完全固体素子であり、省スペースである等の理由から、特に近年注目されている。

[0003] 有機EL素子の高効率化には光取り出し効率の向上が必須であるが、有機EL素子は発光層と金属電極との距離が数十nmオーダーと近いため、表面プラズモンモード光の導波損失が大きく、光取り出し効率が上がらないという課題を有している。表面プラズモンモード光の導波損失を少なくする手段としては、トップエミッション型の構成を取ることが挙げられる。

[0004] また、他の課題として、有機EL素子を、面積が広い照明等の用途で使用する場合、電圧降下に起因した輝度ムラが発生することが挙げられる。輝度ムラを抑制する手段としては、透明導電性膜に抵抗値が低い補助電極を付与する手段が挙げられるが、従来の手段では前述のトップエミッション型有機EL素子の補助電極の形成方法としては適さないことが判明した。例えば、補助電極となる金属材料を全面に成膜し、続いてフォトリソグラフィー工程により、補助電極となる層をパターンエッチングして補助電極を形成する方法が開示されているが（例えば、特許文献1参照）、該方法をトップエミッション型有機EL素子に適用した場合、駆動電圧の上昇や素子寿命の著しい

低下を引き起こすことが判明した。これは、フォトリソグラフィー工程において、有機層がエッチング液に浸漬されることに起因する。また、スクリーン印刷法で補助電極を形成する方法が開示されているが（例えば、特許文献2参照）、スクリーン印刷法では、インク溶媒による素子寿命の低下に加え、補助電極の抵抗値が十分に下がらないため、発光効率の改良度が不十分であるという課題があることが分かった。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2008-134647号公報
特許文献2：WO2005/041217号明細書

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0006] 本発明は、上記課題に鑑みなされたものであり、その目的は、発光効率と駆動電圧が改良された有機エレクトロルミネッセンス素子及び照明装置を提供することにある。

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することができる。
- [0008] 1. 少なくとも透明導電性層と発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、エアロゾルジェット印刷法で形成した補助電極を有していることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [0009] 2. 前記補助電極が光取り出し側の透明導電性層上に形成されていることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [0010] 3. 前記透明導電性層と発光層との間に透明保護層を有していることを特徴とする前記1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [0011] 4. 前記透明保護層がパターンニングされていることを特徴とする前記1～3のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [0012] 5. 前記透明保護層のパターンニングの間隔が500 μ m以上、2,000

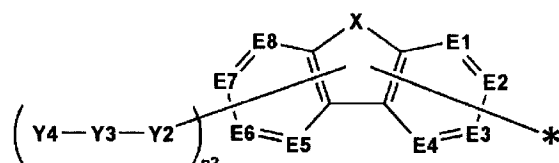
μm 以下であることを特徴とする前記 1～4 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0013] 6. 前記透明保護層の膜厚が 50 nm 以上、200 nm 以下であることを特徴とする前記 1～5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0014] 7. 前記透明保護層が下記一般式 (1) で表される基を有する化合物を含有することを特徴とする前記 1～6 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

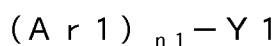
[0015] [化1]

一般式(1)



〔式中、Xは、N(R)、酸素原子、硫黄原子またはSi(R)(R')を表し、E1～E8は、C(R1)または窒素原子を表し、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。Y1は、下記一般式(A)で表される化合物を構成する置換基、結合手または連結基を表す。*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。〕

一般式(A)



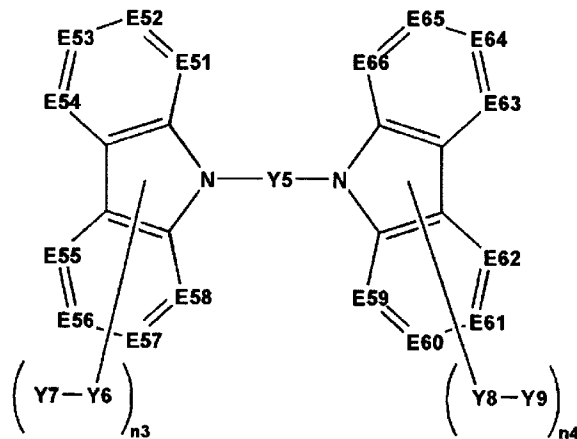
〔式中、n1は1以上の整数を表し、Y1はn1が1の場合は置換基を表し、n1が2以上の場合単なる結合手またはn1価の連結基を表す。Ar1は上記一般式(1)で表される基を表し、n1が2以上の場合、複数のAr1は同一でも異なってもよい。但し、前記一般式(A)で表される基を有する化合物は分子内に3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環を少

なくとも2つ有する。]

8. 前記透明保護層が下記一般式(2)で表される化合物を有することを特徴とする前記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0016] [化2]

一般式(2)



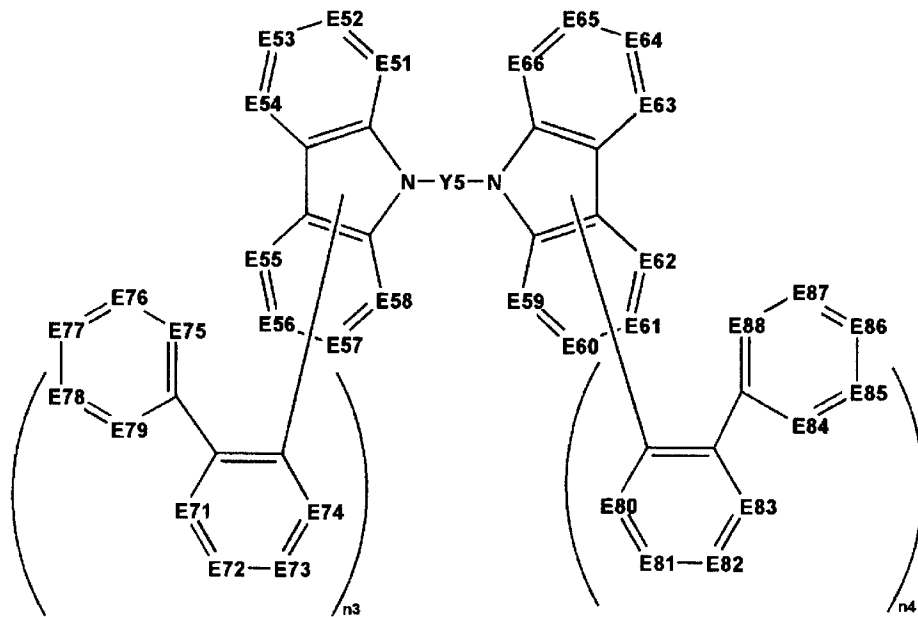
[式中、Y5は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基またはそれらの組み合わせからなる2価の連結基を表す。E51～E66は、各々C(R3)または窒素原子を表し、R3は水素原子または置換基を表す。Y6～Y9は、各々芳香族炭化水素環から導出される基または芳香族複素環から導出される基を表し、Y6またはY7の少なくとも一方、及びY8またはY9の少なくとも一方は、窒素原子を含む芳香族複素環から導出される基を表す。n3及びn4は0～4の整数を表すが、n3+n4は2以上の整数である。]

9. 前記透明保護層が下記一般式(3)で表される化合物を有することを特徴とする前記8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0017]

[化3]

一般式(3)



〔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)または窒素原子を表し、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つは窒素原子を表す。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。〕

10. 前記補助電極が透明保護層のパターニングされていない領域上に形成されていることを特徴とする前記1～9のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0018] 11. 前記1～10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

発明の効果

[0019] 本発明によれば、発光効率と駆動電圧が改良された有機エレクトロルミネッセンス素子及び照明装置を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0020] [図1A]本発明に係る補助電極を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の上面図である。

[図1B]本発明に係る補助電極を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の断面図である。

[図2A]本発明に係る補助電極及び透明保護層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の上面図である。

[図2B]本発明に係る補助電極及び透明保護層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の断面図である。

[図3A]本発明に係る補助電極及び透明保護層を有する別の態様の有機エレクトロルミネッセンス素子の上面図である。

[図3B]本発明に係る補助電極及び透明保護層を有する別の態様の有機エレクトロルミネッセンス素子の断面図である。

[図4A]本発明に係る補助電極及び透明保護層を有する別の態様の有機エレクトロルミネッセンス素子の上面図である。

[図4B]本発明に係る補助電極及び透明保護層を有する別の態様の有機エレクトロルミネッセンス素子の断面図である。

[図5A]本発明に係る補助電極及び透明保護層を有する別の態様の有機エレクトロルミネッセンス素子の上面図である。

[図5B]本発明に係る補助電極及び透明保護層を有する別の態様の有機エレクトロルミネッセンス素子の断面図である。

発明を実施するための形態

[0021] 以下本発明を実施するための最良の形態について詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0022] 図1A～図5Bにおいて、それぞれ(A)は、有機エレクトロルミネッセンス素子の上面図であり、(B)はそれぞれ断面図である。

[0023] 本発明者は、上記課題に鑑み鋭意検討を行った結果、エアロゾルジェット印刷法で補助電極を形成することで、発光効率を高め、駆動電圧を低減できる有機エレクトロルミネッセンス素子を実現することができることを見出し

、本発明に至った次第である。

[0024] 以下、本発明に係るエアロゾルジェット印刷法とエアロゾルジェット印刷法で形成した補助電極を有する本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子について説明する。

[0025] 《エアロゾルジェット印刷法》

本発明に係るエアロゾルジェット印刷法は、金属粒子を含有した液体を窒素ガス等の不活性ガスで噴霧してエアロゾル状にし、得られた金属粒子を含んだエアロゾル状化した流体をノズルから吐出し、所望のパターンの金属配線を描画することを特徴とする印刷方法である。金属粒子を含有した液体は、インクジェット印刷用のインクやスクリーン印刷用のペースト等を用いることができる。エアロゾルジェット印刷法で金属配線を形成した後に溶媒除去や金属粒子の焼結の目的で金属配線を加熱してもよい。本発明において、適用可能な金属粒子の材料としては、補助電極として導電性が出る限りは特に限定されるものではないが、導電性と補助電極を付与したときの透明導電性層の開口率の両立の観点から、金、銀、銅またはその合金が好ましく、より好ましくは銀またはその合金である。本発明に係るエアロゾルジェット印刷法は、不活性ガスでエアロゾル状にすることで、インクジェット印刷法やスクリーン印刷法などの他の印刷法に比べて、着弾時の溶媒含有量を少なくすることができるという特徴を有している。有機エレクトロルミネッセンス素子の発光層に与える影響を考慮すると、着弾時の溶媒含有量が少ないことは有機エレクトロルミネッセンス素子用の補助電極の形成方法として非常に適した特徴を有していることになる。本発明に係るエアロゾルジェット印刷法の装置としては、M³D（米国登録商標）装置などが挙げられる。

[0026] 《補助電極》

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子に適用する補助電極は、前述のエアロゾルジェット印刷法で形成した金属配線である。本発明に係る補助電極は透明導電性層上に形成することが好ましい。補助電極の線幅は透明導電性層の開口率の観点から50μm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、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。本発明に係る補助電極は、透明保護層がパターンニングされている場合は、透明保護層のパターンニングされていない領域上に形成することが好ましい。本発明でいう透明保護層のパターンニングされていない領域とは、透明保護層がない領域上のことを指す。

[0027] 《有機エレクトロルミネッセンス素子》

次いで、面発光体である本発明の有機EL素子の実施形態を詳細に説明するが、以下に記載する内容は、本発明の実施態様の代表例であり、本発明はその要旨を超えない限り、これらの内容に限定されない。

[0028] はじめに、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示す。

- [0029] (i) 陽極／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
(ii) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
(iii) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／陰極
(iv) 陽極／発光層／電子輸送層／電子注入層／透明保護層／陰極
(v) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／透明保護層／陰極
(vi) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／透明保護層／陰極

本発明の有機EL素子では、陰極が透明である透明導電性層であることを特徴とし、陽極はアプリケーションによって透明、不透明のどちらも選択することができる。本発明の有機EL素子は、陽極～陰極の順番に成膜するトップエミッション型の構成を取ることが好ましい。

[0030] 発光層は、少なくとも発光色の異なる2種以上の発光材料を含有していることが好ましく、単層でも複数の発光層からなる発光層ユニットを形成していてもよい。また、正孔輸送層には正孔注入層、電子阻止層も含まれる。

[0031] [透明保護層]

本発明の有機EL素子において、透明保護層とは、実質的に透明であり、

かつ透明保護層の後工程での発光層へのプロセスダメージを抑制する層である。本発明でいう実質的に透明とは、可視光透過率が50%以上のことを指す。

[0032] 本発明の有機EL素子は、透明導電性層と発光層との間に透明保護層を有していることが好ましい。透明導電性層と発光層との間に透明保護層を有していることにより、透明導電性層上に本発明に係るエアロゾルジェット印刷法で補助電極を形成するときの発光層に与えるダメージをより抑制することが可能となる。

[0033] 本発明に係る透明保護層は、必要に応じてパターニングされていても良い。透明保護層をパターニングすることで透明導電性層と電子注入層が電氣的に接触した構成となるため、透明導電性層から輸送された電子が透明保護層を通らずに電子注入層に輸送されるため、低い電圧で発光させることが可能となる。

[0034] 本発明に係る透明保護層は、パターニングが500 μ m以上、5,000 μ m以下の間隔内でされていることが好ましい。パターニングの形状に特に制限がないが、例えば、ライン状のパターニングや格子状のパターニング形態を取ることができる。本発明に係る透明保護層のパターニング方法としては、シャドーマスク方法、レーザー熱転写法、レーザー蒸着法、レーザーアブレーション法、インクジェット法、印刷法等が挙げられる。本発明に係る透明保護層のパターニング方法として好ましい形態は、蒸着によるシャドーマスク法である。

[0035] 本発明に係る透明保護層の膜厚は、50nm以上、200nm以下の範囲内であることが好ましい。膜厚が50nm未満では、透明導電性層の成膜工程での発光層の劣化が課題となり、膜厚が200nmを超えると光取り出し効率の低下が課題となる。

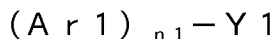
[0036] 本発明に係る透明保護層を形成する材料は、本発明で規定する条件を満足する材料であれば、特に制限はなく、例えば、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム等の金属錯体、酸化モリブデン、酸化バナジウム等の金属酸化

物を用いることができる。本発明に係る透明保護層を形成する材料として、特に好ましい材料は、前記一般式（１）で表される基を有する化合物、一般式（２）で表される化合物もしくは一般式（３）で表される化合物である。

[0037] 《一般式（１）で表される基を有する化合物》

前記一般式（１）において、 X は、 $N(R)$ 、酸素原子、硫黄原子または $Si(R)(R')$ を表し、 $E1 \sim E8$ は、 $C(R1)$ または窒素原子を表し、 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。 $Y1$ は、下記一般式（Ａ）で表される化合物を構成する置換基、結合手または連結基を表す。 $*$ 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。

[0038] 一般式（Ａ）



上記一般式（Ａ）において、 $n1$ は 1 以上の整数を表し、 $Y1$ は $n1$ が 1 の場合は置換基を表し、 $n1$ が 2 以上の場合は単なる結合手または $n1$ 価の連結基を表す。 $Ar1$ は上記一般式（１）で表される基を表し、 $n1$ が 2 以上の場合、複数の $Ar1$ は同一でも異なってもよい。但し、前記一般式（Ａ）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。

[0039] はじめに、本発明に係る一般式（Ａ）で表される化合物について説明する。

[0040] 一般式（Ａ）において、 $Y1$ 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)

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] これらの置換基は、上記の置換基によって更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(A)において、Y₁で表されるn₁個の連結基としては、具体的には、2個の連結基、3個の連結基、4個の連結基等が挙げられる。

[0043] 一般式(A)において、Y₁で表される2個の連結基としては、例えば、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、ナフトジチオフエン環、アントラフラン環、アントラジフラン環、アントラチオフエン環、アントラジチオフエン環、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（ナフトチオフエン環）等）が挙げられる。

[0044] 一般式（A）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、ペントントリイル基、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、シクロペントントリイル基、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。

[0045] 一般式（A）において、Y₁で表される4価の連結基としては、上記の3価の基に更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。

[0046] 尚、上記の2価の連結基、3価の連結基、4価の連結基は、各々更に、一般式（A）において、Y₁で表される置換基を有していても良い。

[0047] 一般式（1）において、Y₂で表される2価の連結基としては、2価の連結基としては、例えば、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、好ましくは窒素原子、酸素原子及び硫黄原子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、ジベンゾチオフエン環、ナフトフラン環、ナフトチオフエン環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフエン環、ナフトジフラン環、ナフトジチオフエン環、アントラフラン環、アントラジフラン環、アントラチオフエン環、アントラジチオフエン環、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（ナフトチオフエン環）等）が挙げられる。

[0048] 一般式（１）において、Ｙ３及びＹ４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、例えば、ベンゼン環、オキサゾール環、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、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。

[0049] 更に、Ｙ３及びＹ４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、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。

[0050] 一般式（１）において、Ｙ３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、更に好ましくは、ベンゼン環から導出される基である。

[0051] 一般式（１）において、Ｙ４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、更に好ましくは、窒素原子を環構成原子と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、Ｙ４がピリジン環から導出される基であることである。

[0052] 一般式(1)において、XはN(R)、酸素原子、硫黄原子またはSi(R)(R')を表し、E1～E8はC(R1)または窒素原子を表し、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。

[0053] 一般式(1)において、R、R'及びR1で表される置換基としては、例えば、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、アリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基、プロパルギル基等)、芳香族炭化水素基(芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、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、モルホルル基、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)、アリーロキシ基(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。

[0054] これらの置換基は、上記の置換基によって更に置換されていてもよい。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。

[0055] 《一般式(2)で表される化合物》

本発明では、上記一般式(1)で表される基を有する化合物の中でも、上記一般式(2)で表される化合物が好ましい。以下、一般式(2)で表される化合物について説明する。

- [0056] 一般式(2)において、Y5で表されるアリーレン基、ヘテロアリーレン基は、一般式(1)で表される基を有する化合物において、Y1で表される2価の連結基の一例として記載されているアリーレン基、ヘテロアリーレン基と各々同義である。
- [0057] 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、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。
- [0058] 一般式(2)において、E51～E66で各々表されるC(R3)のR3で表される置換基は、一般式(1)において、Y1で表される置換基と同義である。
- [0059] 一般式(2)において、E51～E66で各々表される基としては、E51～E58のうちの6つ以上及びE59～E66のうちの6つ以上が、各々C(R3)で表されることが好ましい。
- [0060] 一般式(2)において、Y6～Y9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。
- [0061] 更に、前記芳香族炭化水素環は、一般式(1)において、Y1で表される置換基を有してもよい。
- [0062] 一般式(2)において、Y6～Y9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更に窒素原子で置換されている環を示す）等が挙げられる。

[0063] 更に、前記芳香族炭化水素環は、一般式（１）において、Ｙ１で表される置換基を有してもよい。

[0064] 一般式（２）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、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更に窒素原子で置換されている環を示す）等が挙げられる。

[0065] 一般式（２）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。

[0066] また、一般式（２）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。

[0067] 更に、本発明に係る一般式（２）で表される化合物の中でも更に好ましい態様について説明する。

[0068] 《一般式（３）で表される化合物》

本発明では、上記一般式（２）で表される化合物の中でも、更に上記一般式（３）で表される化合物が好ましい。以下、一般式（２）で表される化合物について説明する。

[0069] 一般式（３）において、Ｙ５で表されるアリーレン基、ヘテロアリーレン基は、一般式（１）において、Ｙ１で表される２価の連結基の一例として記載されているアリーレン基、ヘテロアリーレン基と各々同義である。

[0070] 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、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。

[0071] 一般式（３）において、Ｅ５１～Ｅ６６、Ｅ７１～Ｅ７８で各々表される－Ｃ（Ｒ３）＝のＲ３で表される置換基は、一般式（１）において、Ｙ１で表される置換基と同義である。

[0072] 一般式（３）において、Ｅ５１～Ｅ５８のうちの６つ以上及びＥ５９～Ｅ６６のうちの６つ以上が、各々Ｃ（Ｒ３）で表されることが好ましい。

[0073] 一般式（３）において、Ｅ７５～Ｅ７９の少なくとも１つ及びＥ８４～Ｅ８８の少なくとも１つが窒素原子を表すことが好ましい。

[0074] 更には、一般式（３）において、Ｅ７５～Ｅ７９のいずれか１つ及びＥ８４～Ｅ８８のいずれか１つが窒素原子を表すことが好ましい。

[0075] また、一般式（３）において、Ｅ７１～Ｅ７４及びＥ８０～Ｅ８３が、各々－Ｃ（Ｒ３）＝で表されることが好ましい態様として挙げられる。

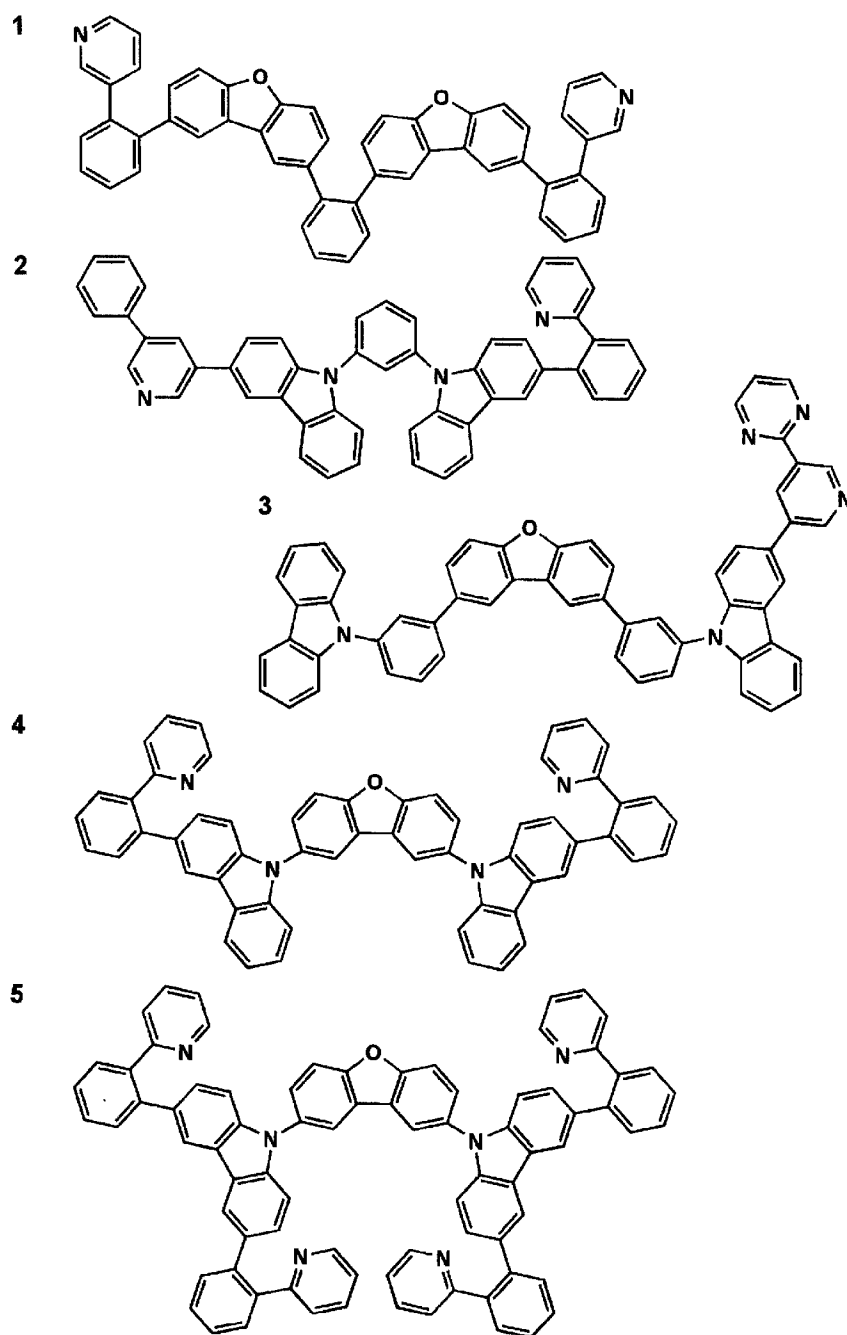
[0076] 更に、一般式（２）または一般式（３）で表される化合物において、Ｅ５３がＣ（Ｒ３）で表され、且つ、Ｒ３が連結部位を表すことが好ましく、更に、Ｅ６１も同時にＣ（Ｒ３）で表され、且つ、Ｒ３が連結部位を表すことが好ましい。

[0077] 更に、Ｅ７５及びＥ８４が窒素原子で表されることが好ましく、Ｅ７１～

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。

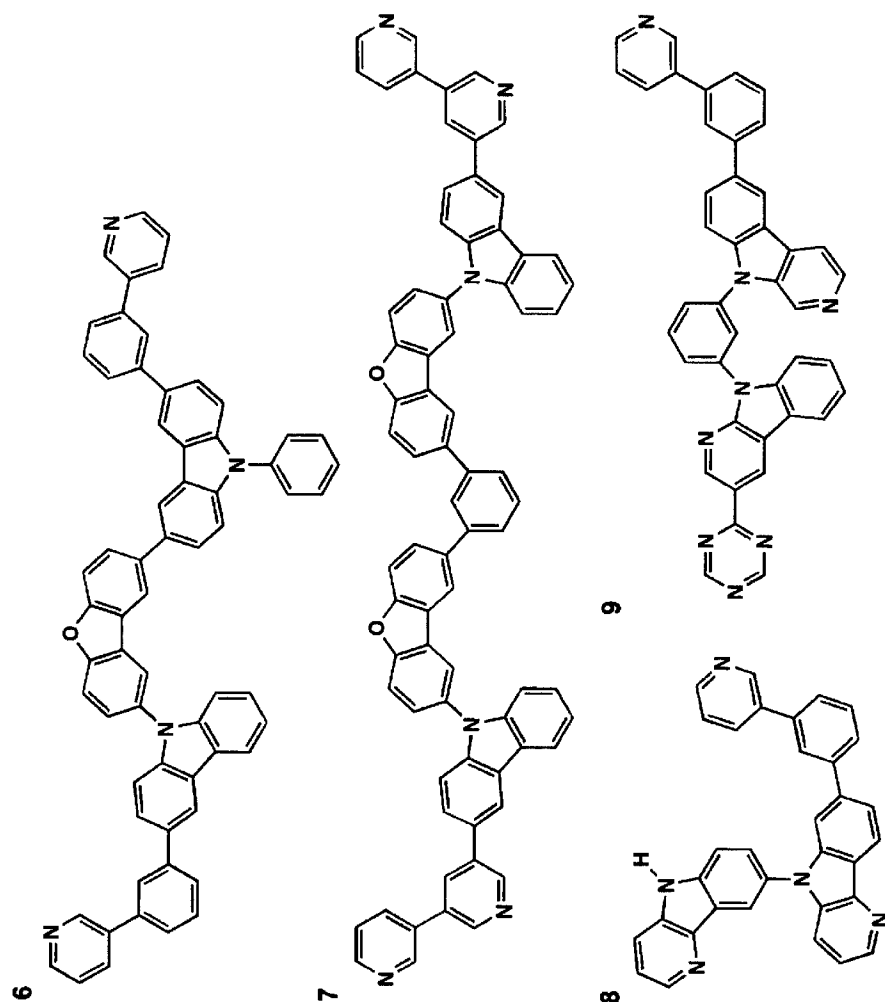
[0078] 以下、本発明に係る一般式 (1) で表される基を有する化合物、及び一般式 (2) 、一般式 (3) で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

[0079] [化4]



[0080]

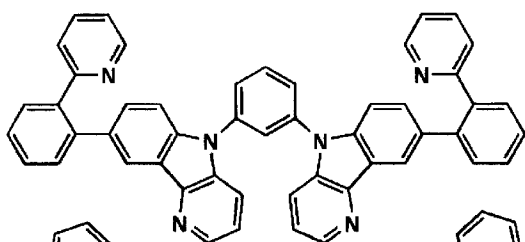
[化5]



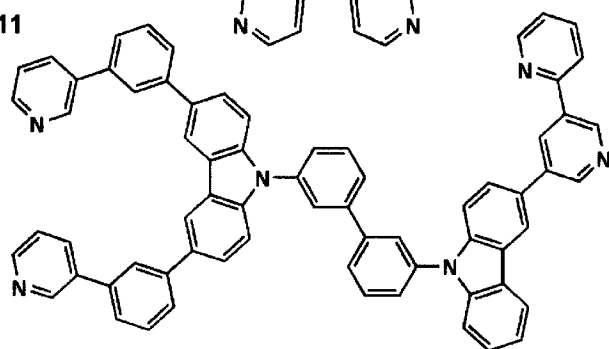
[0081]

[化6]

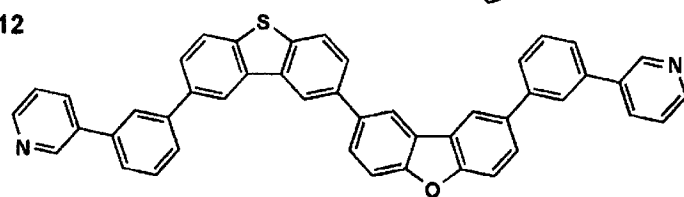
10



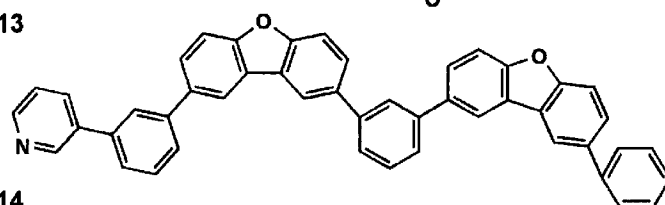
11



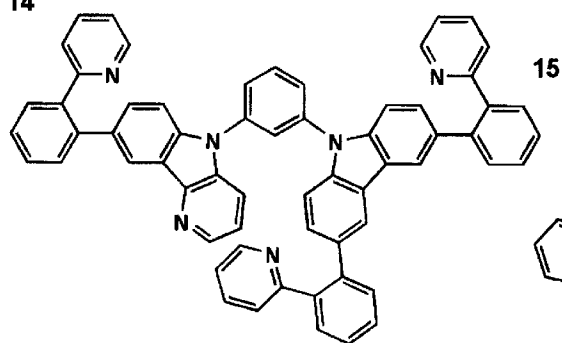
12



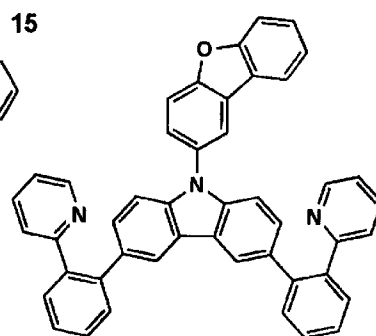
13



14



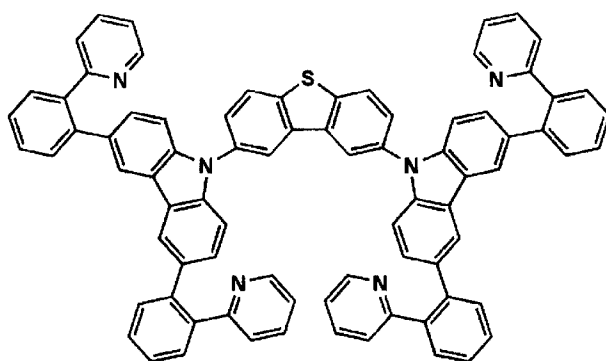
15



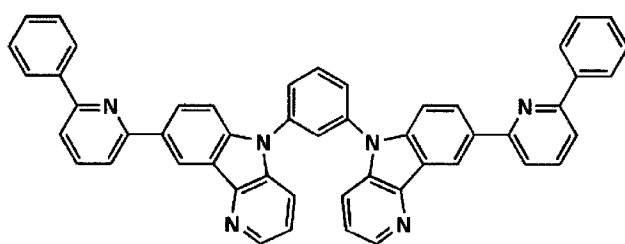
[0082]

[化7]

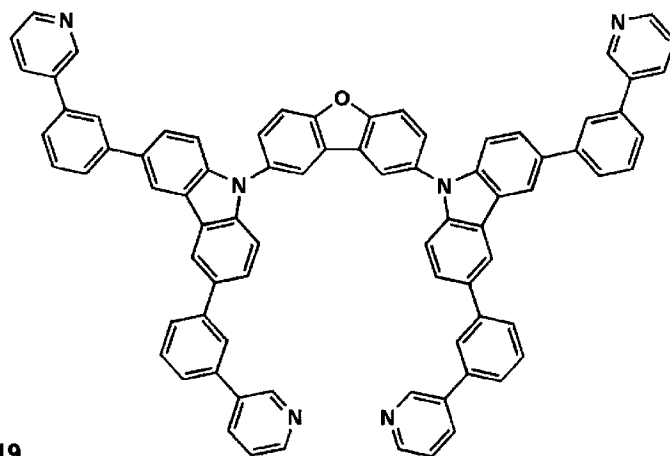
16



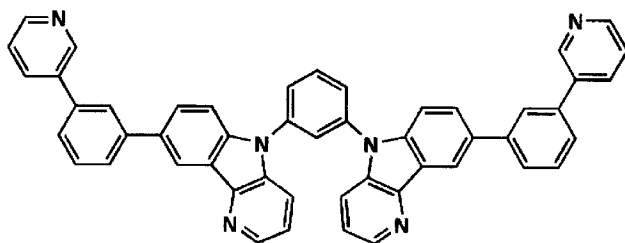
17



18



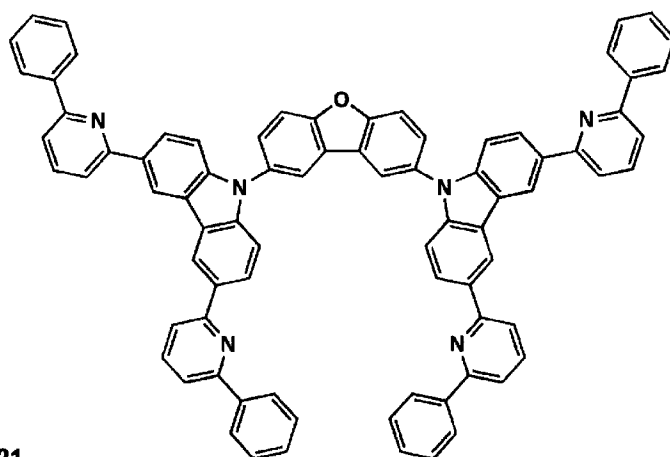
19



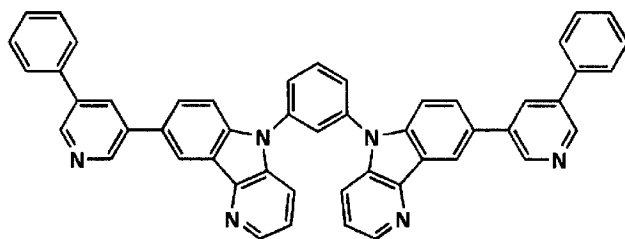
[0083]

[化8]

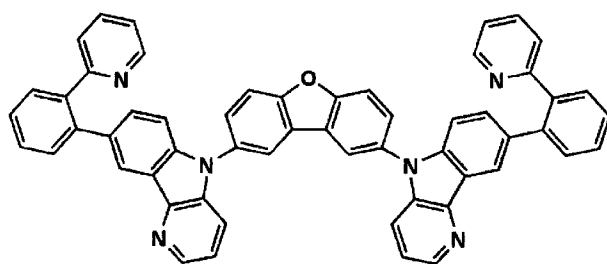
20



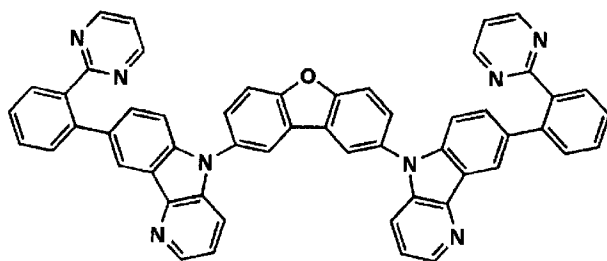
21



22

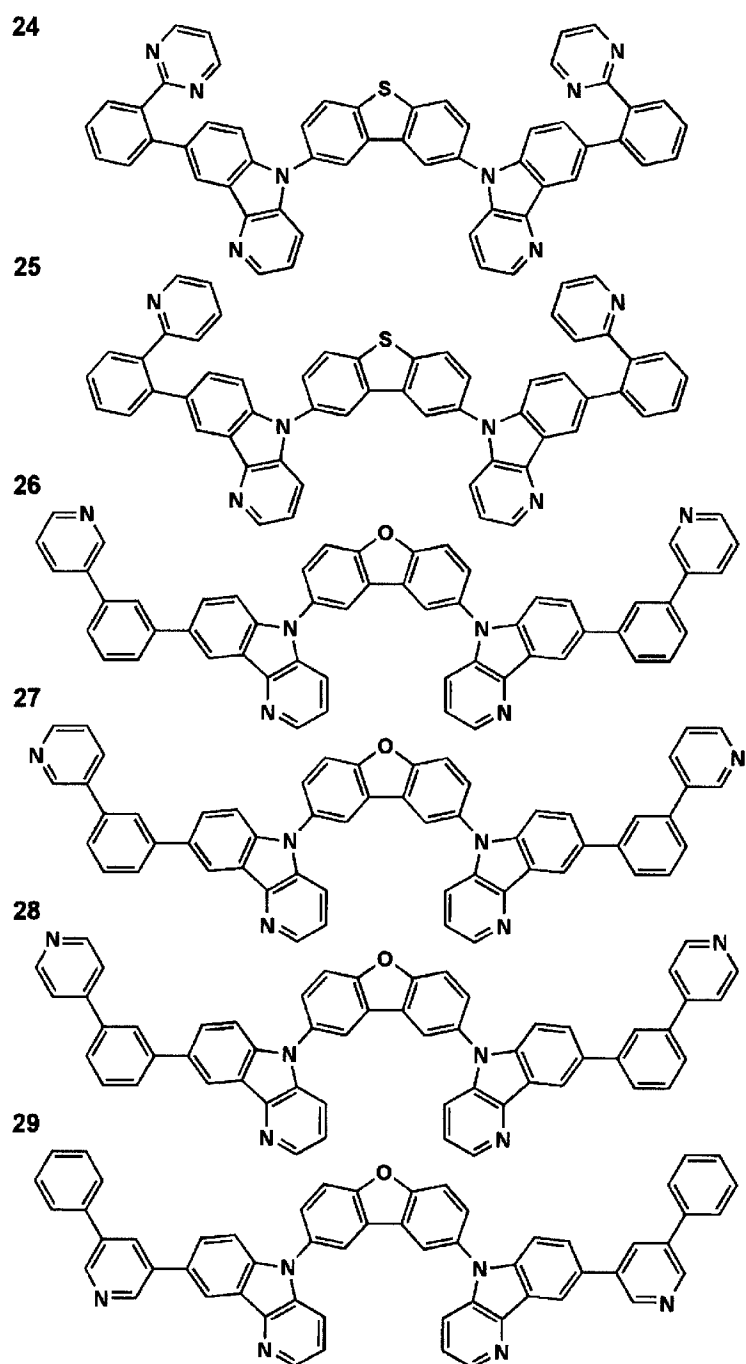


23



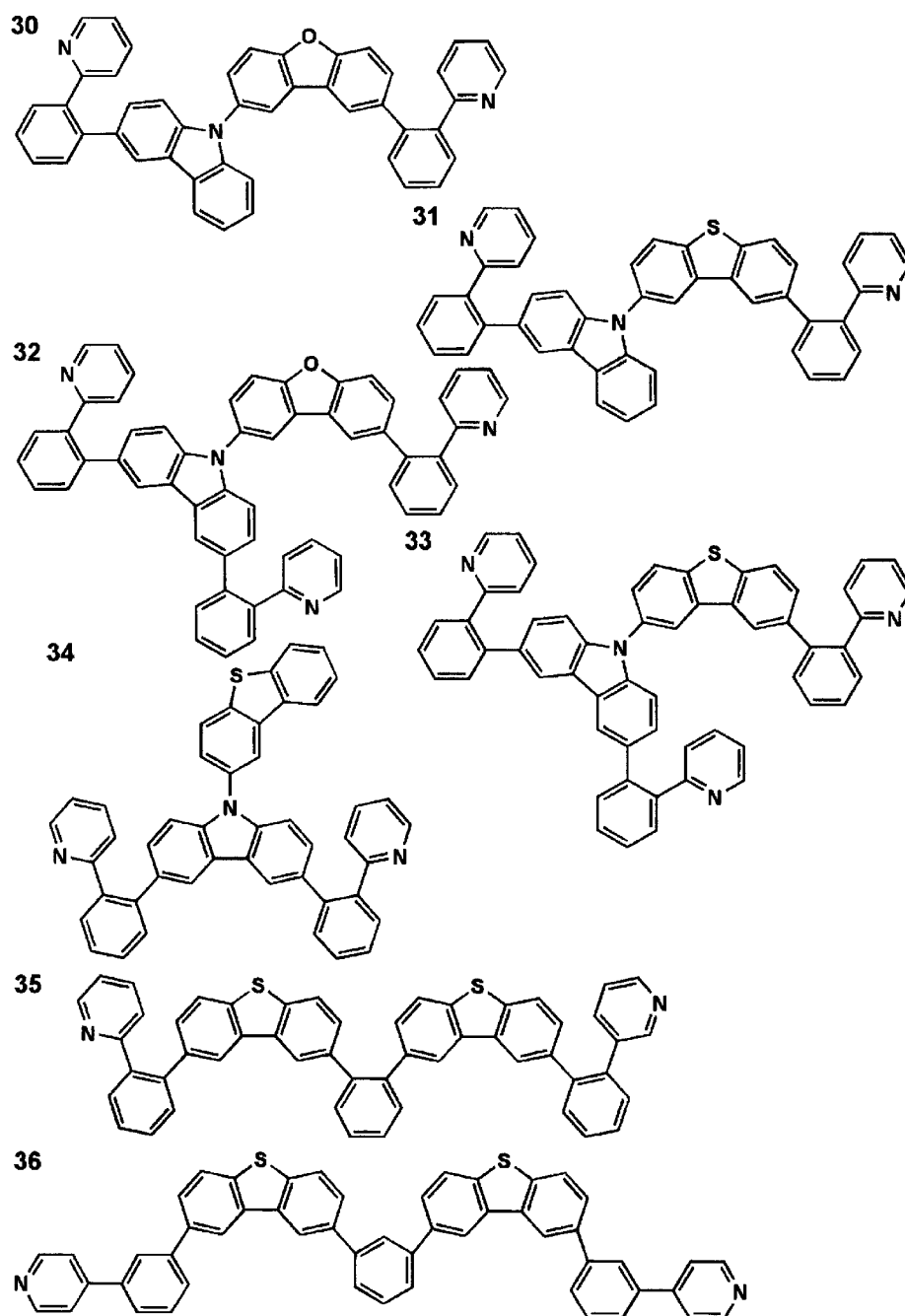
[0084]

[化9]



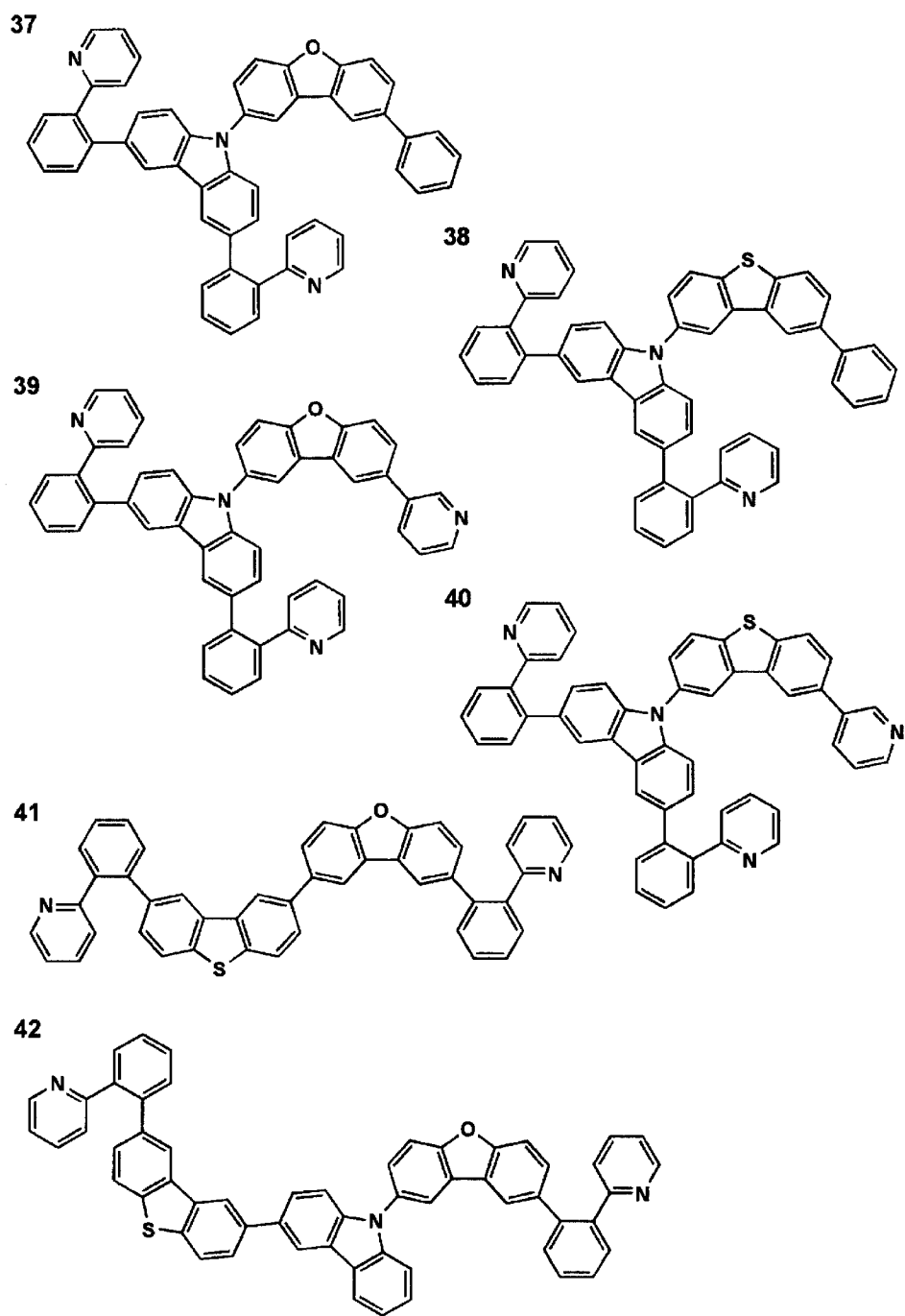
[0085]

[化10]



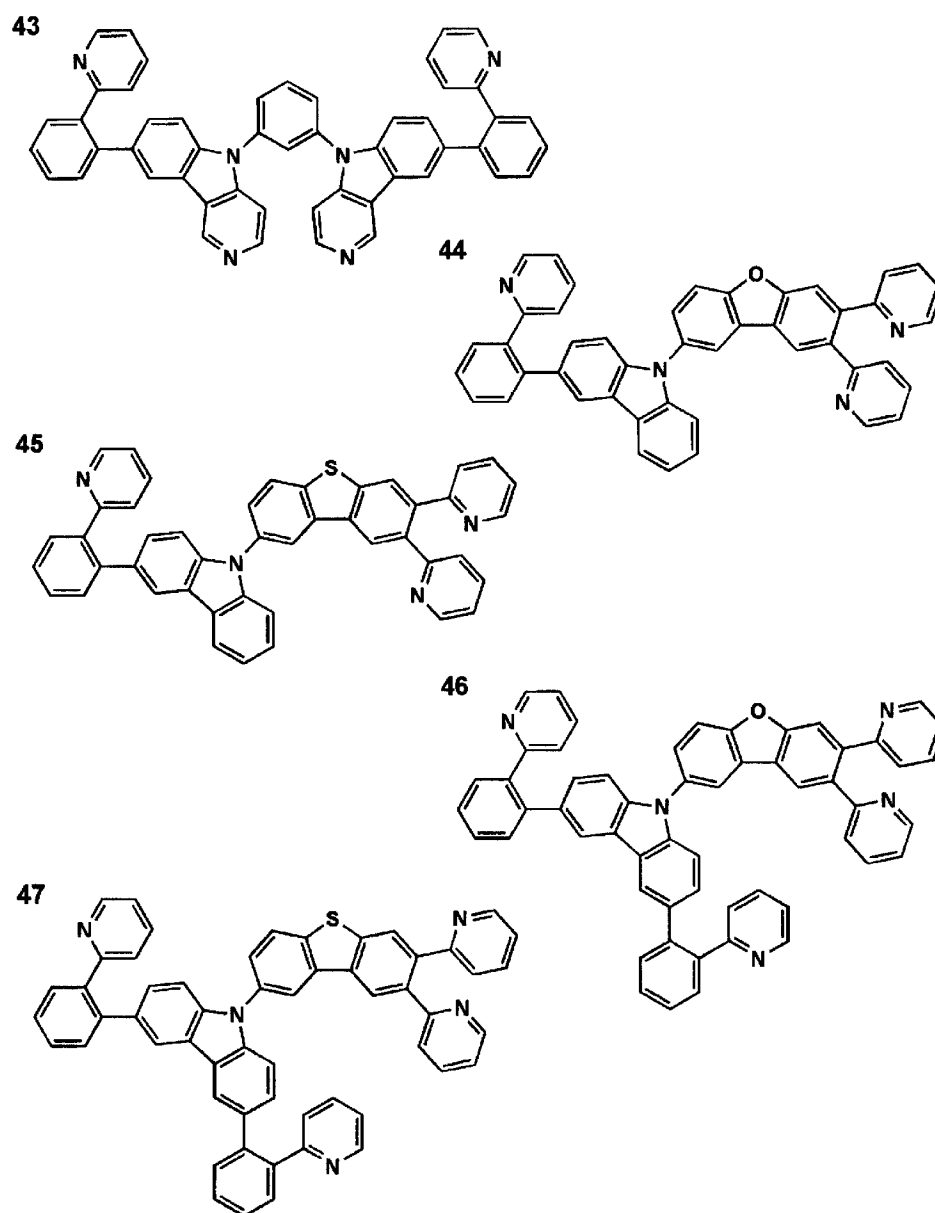
[0086]

[化11]



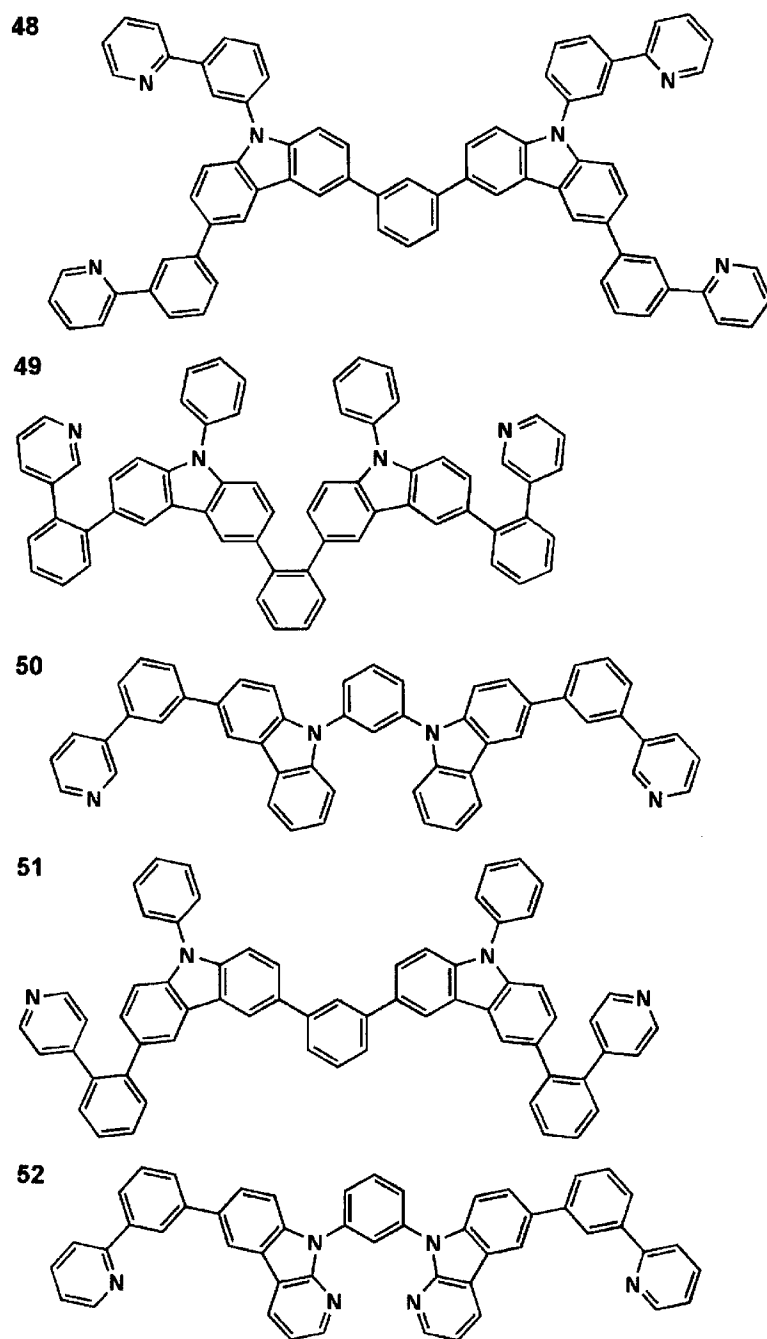
[0087]

[化12]



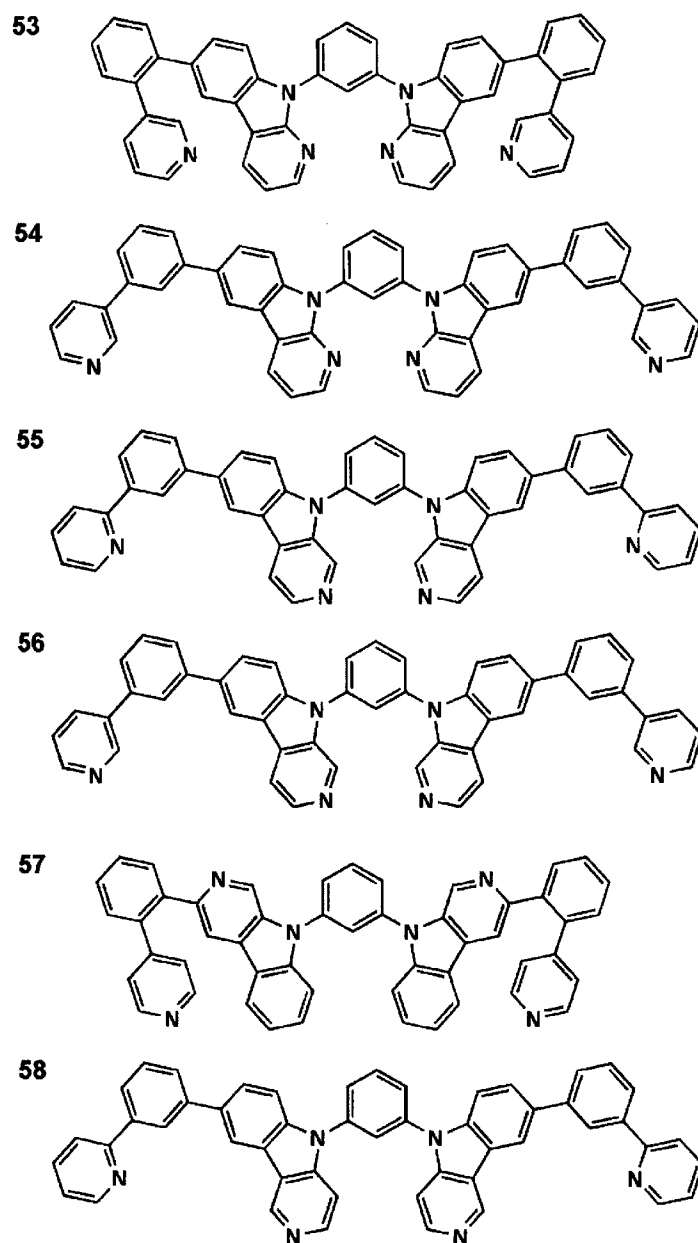
[0088]

[化13]



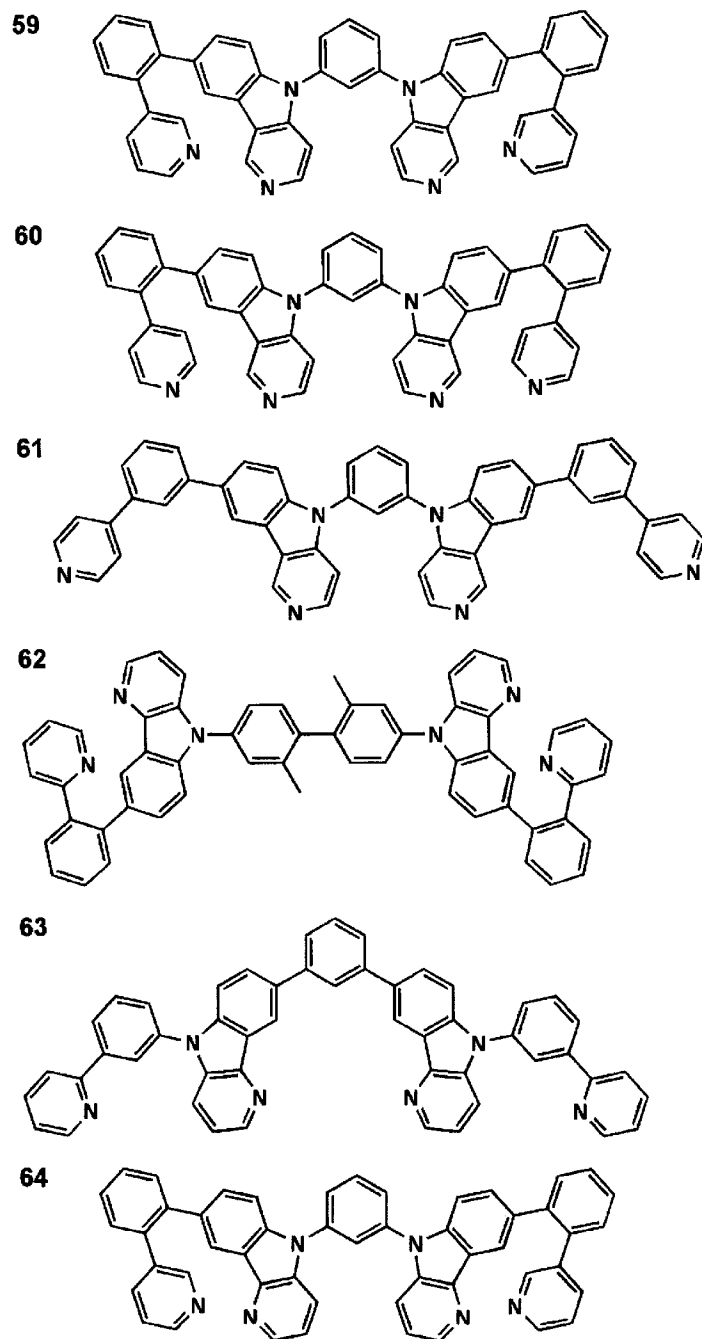
[0089]

[化14]



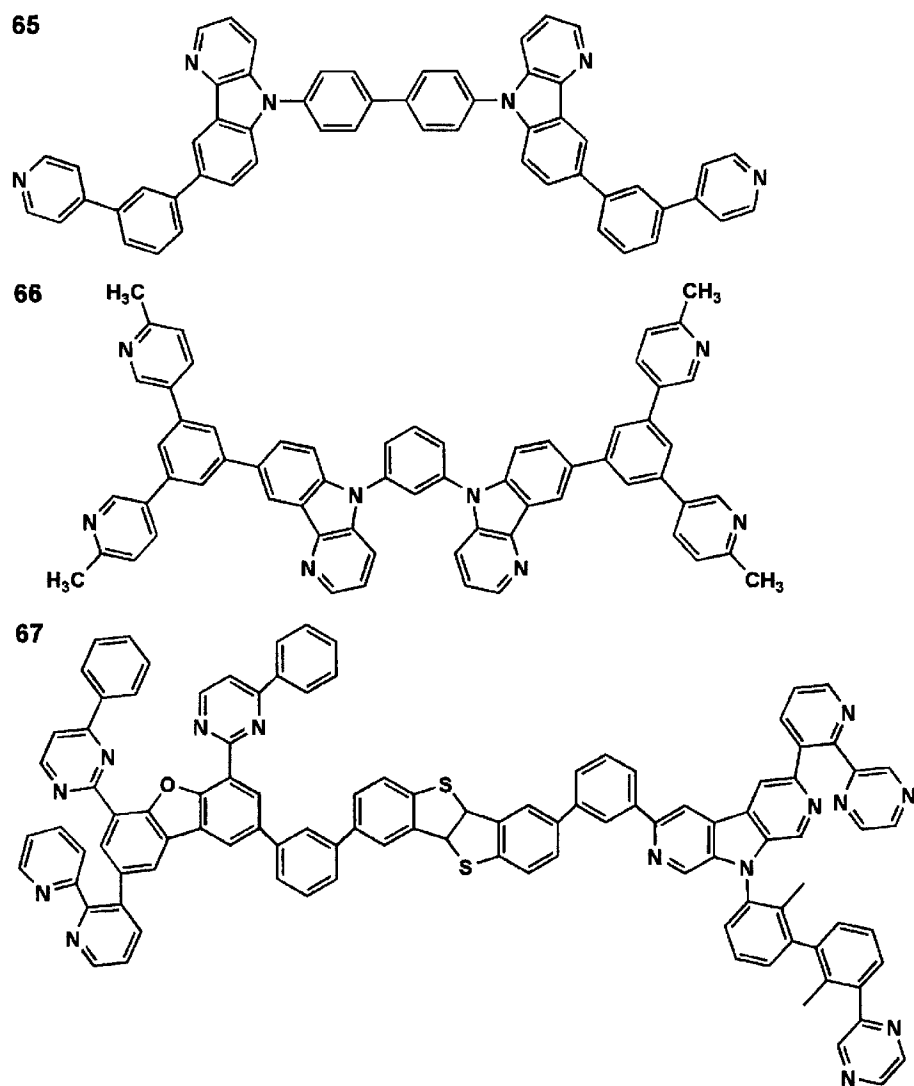
[0090]

[化15]



[0091]

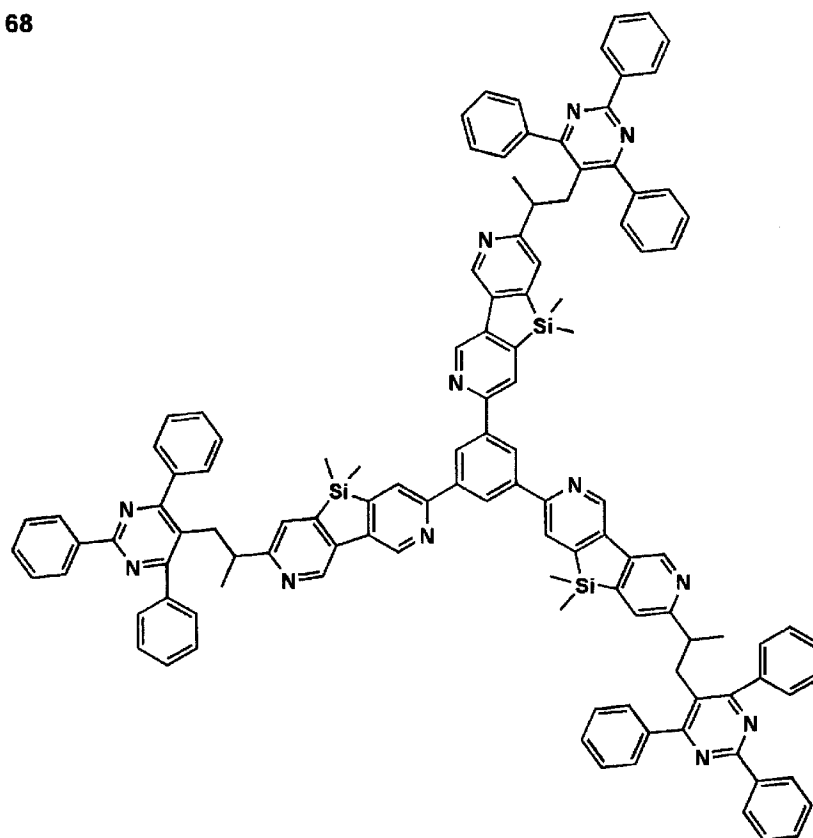
[化16]



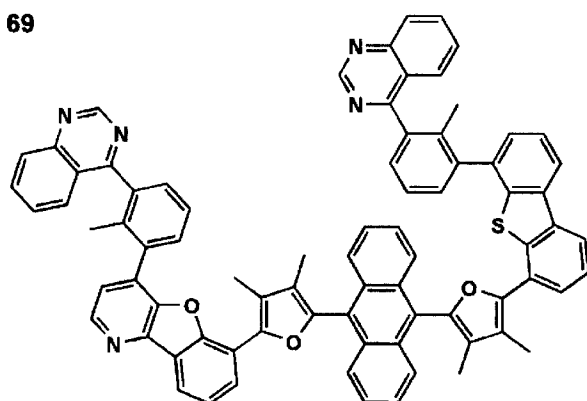
[0092]

[化17]

68

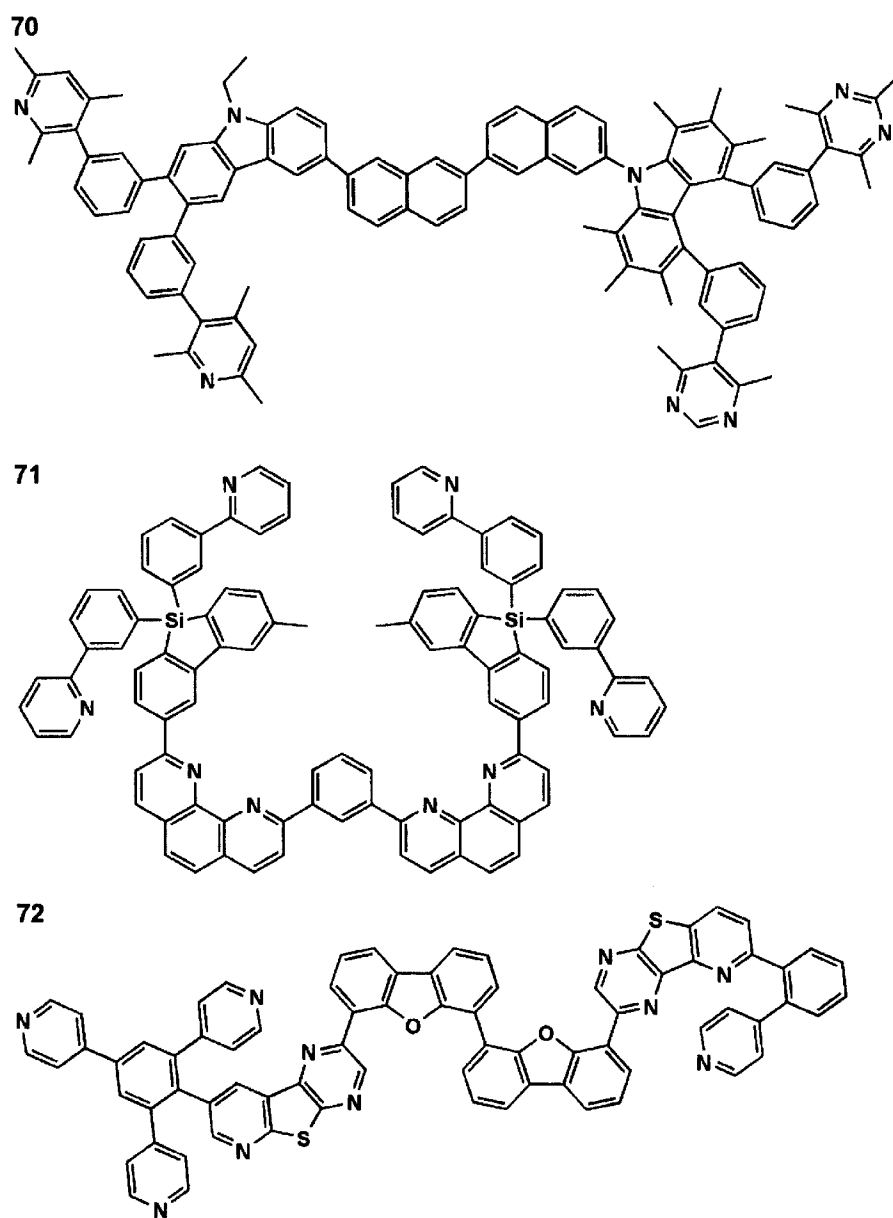


69



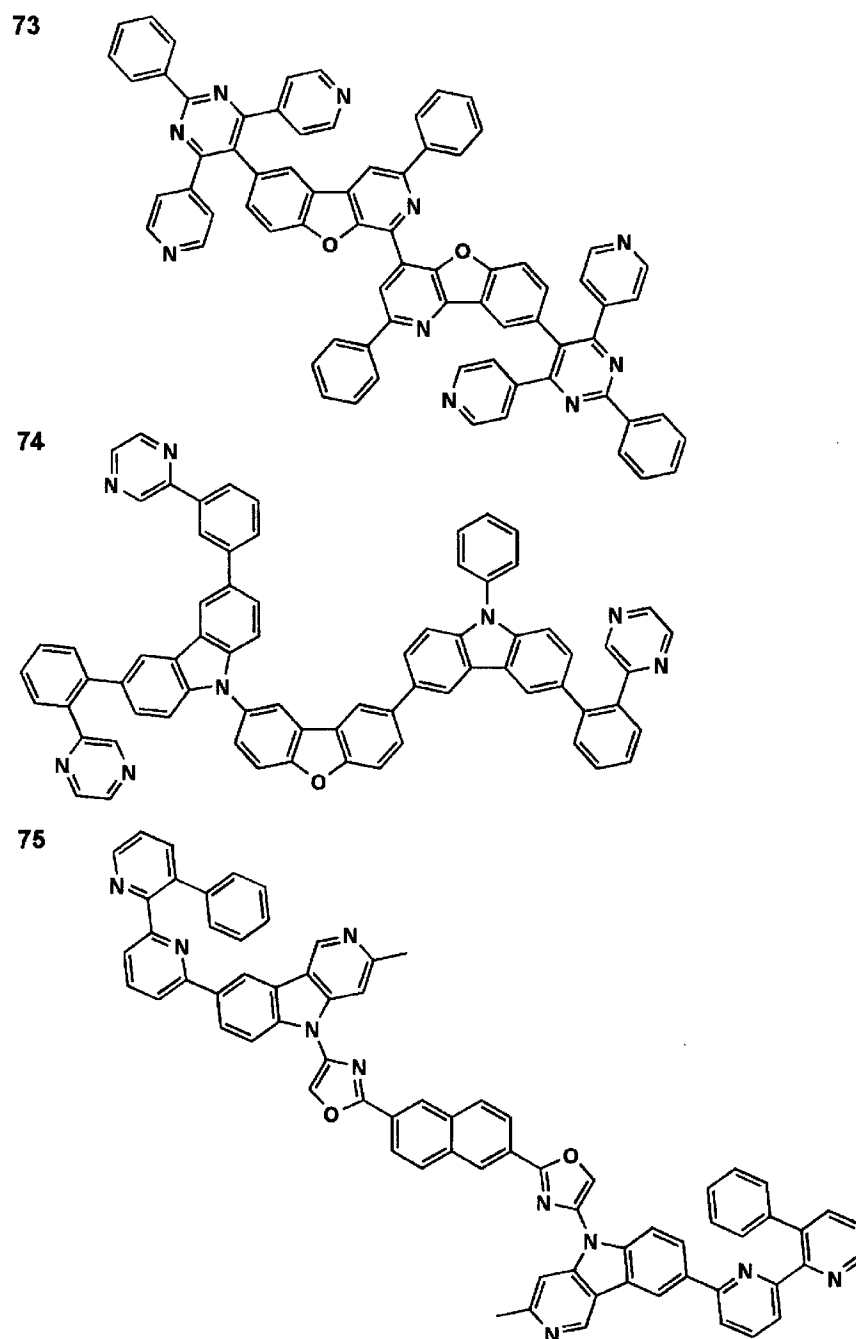
[0093]

[化18]



[0094]

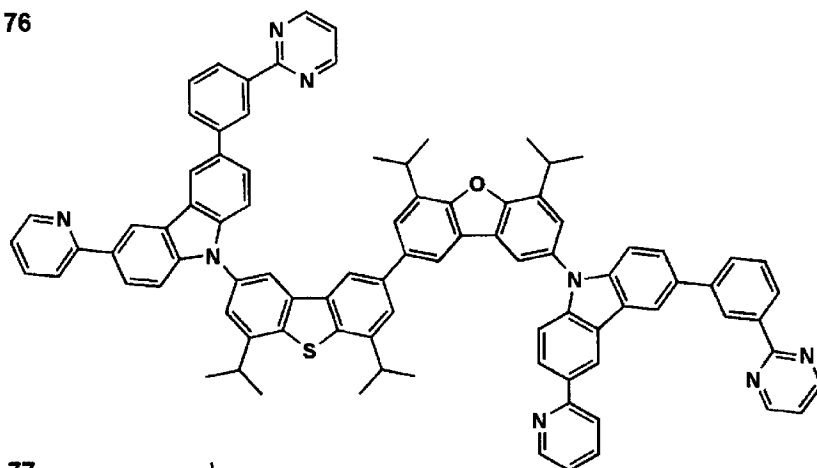
[化19]



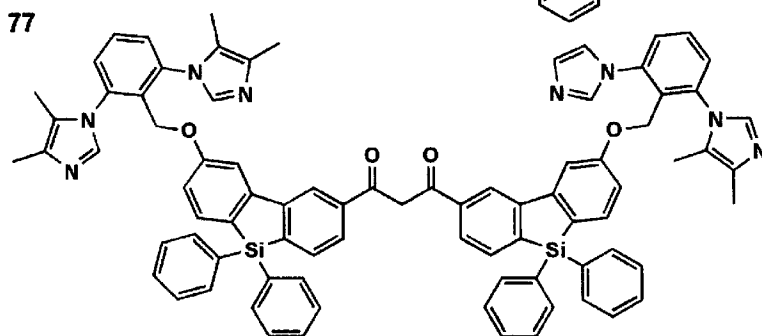
[0095]

[化20]

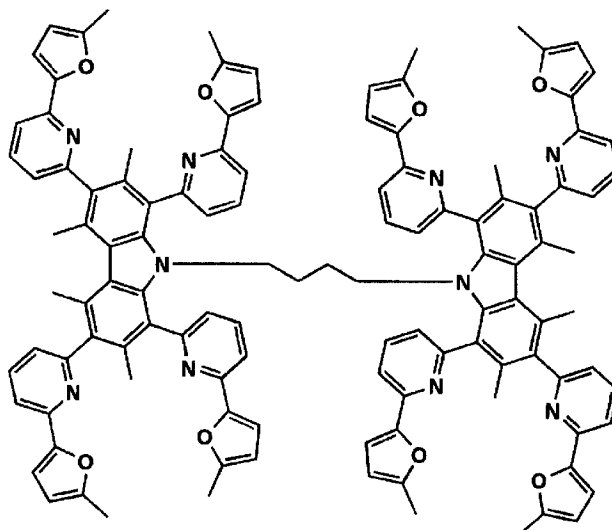
76



77

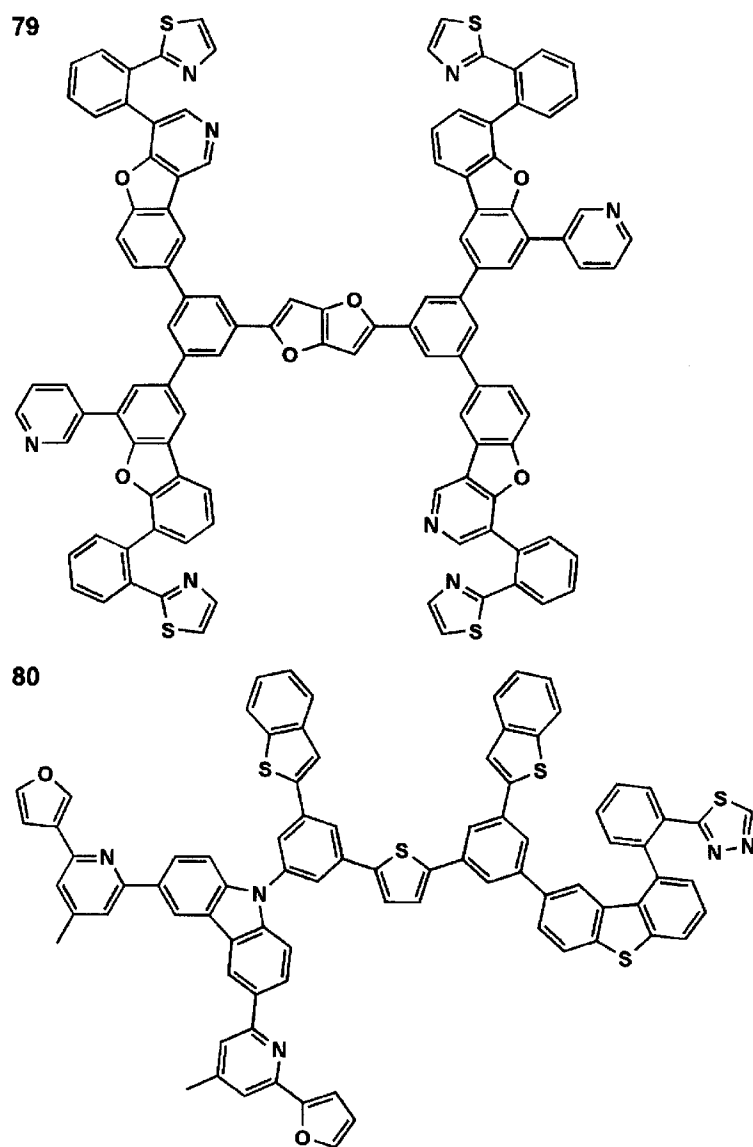


78



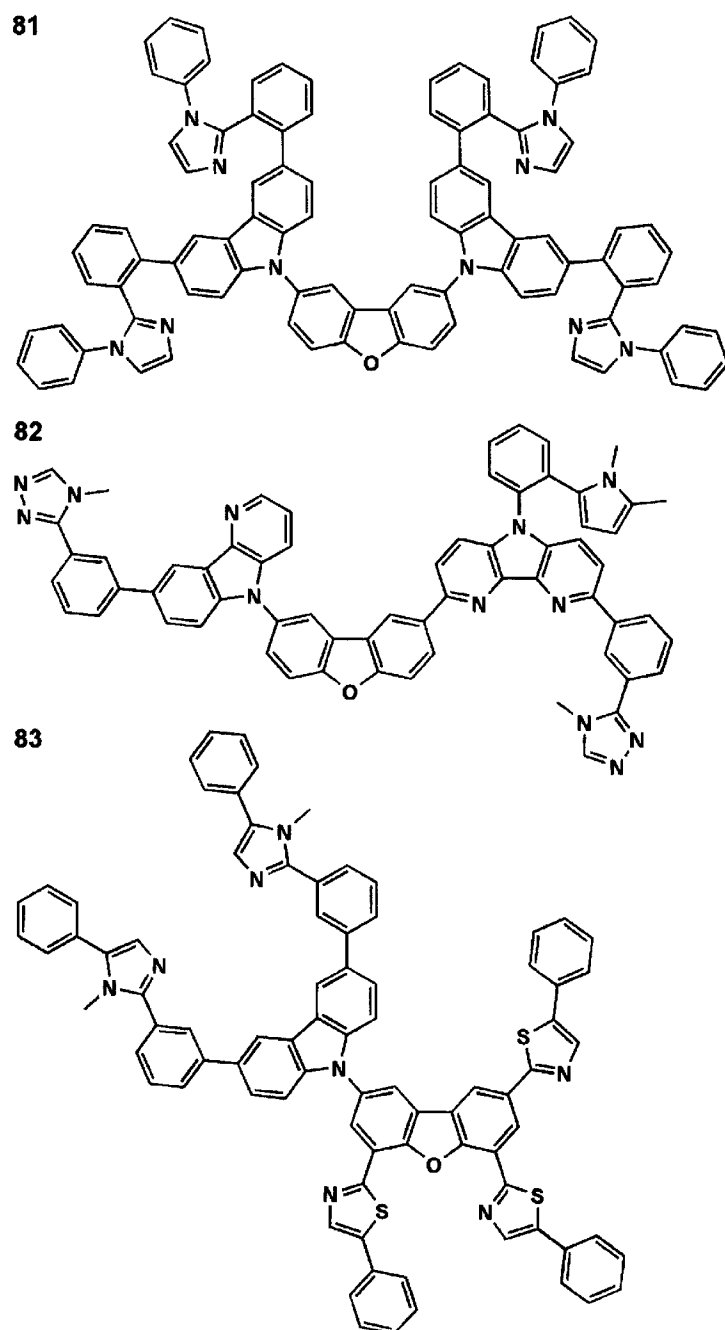
[0096]

[化21]



[0097]

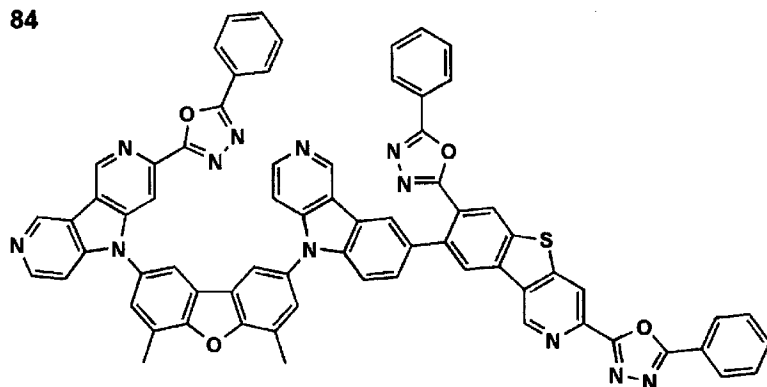
[化22]



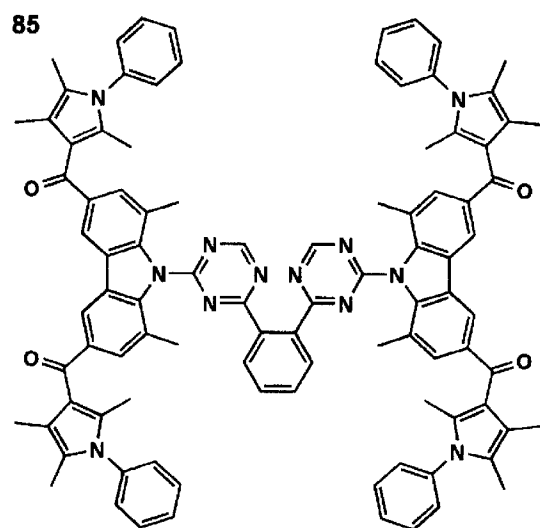
[0098]

[化23]

84



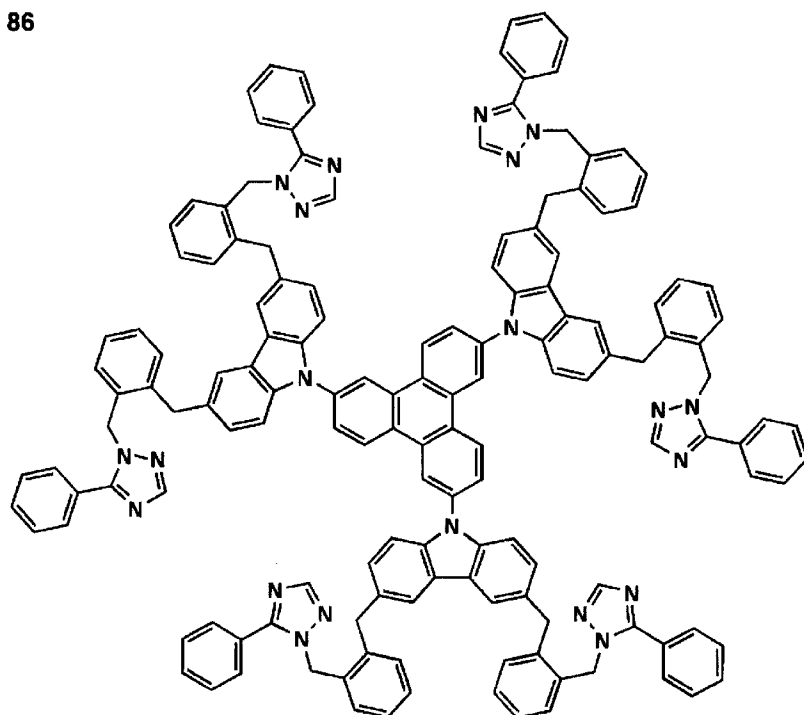
85



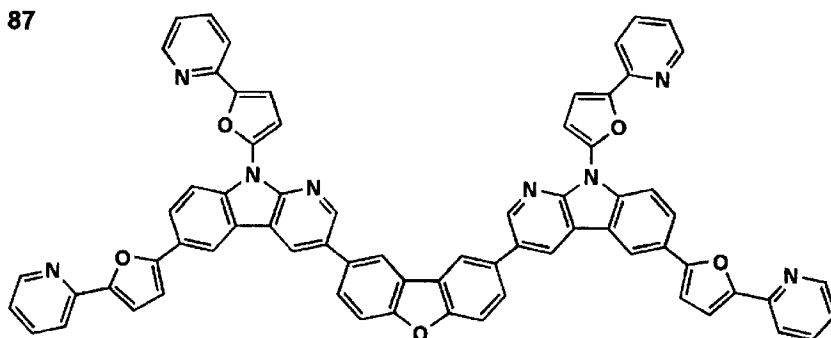
[0099]

[化24]

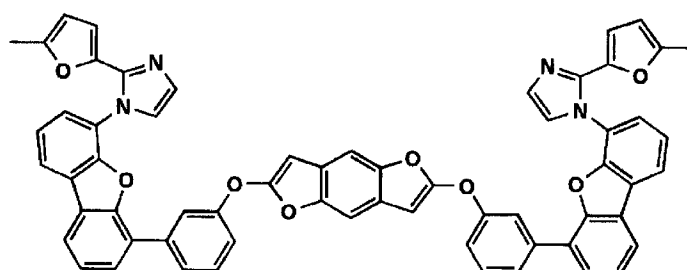
86



87



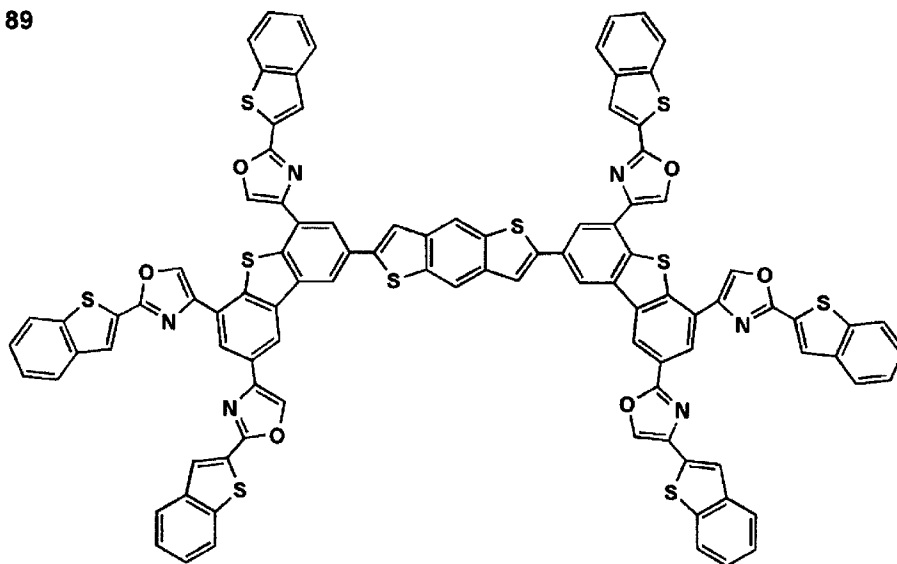
88



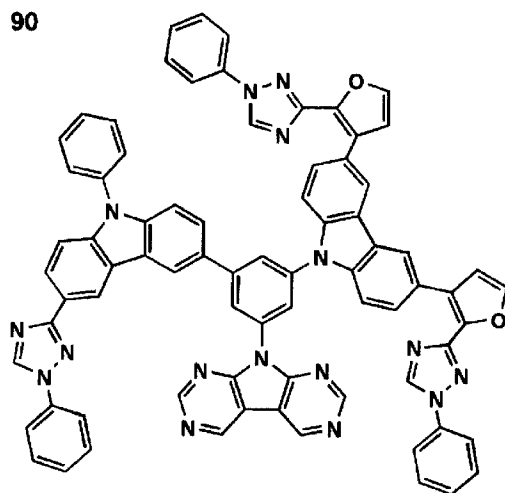
[0100]

[化25]

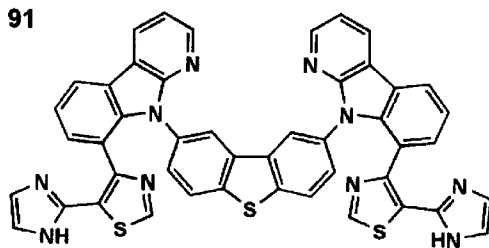
89



90



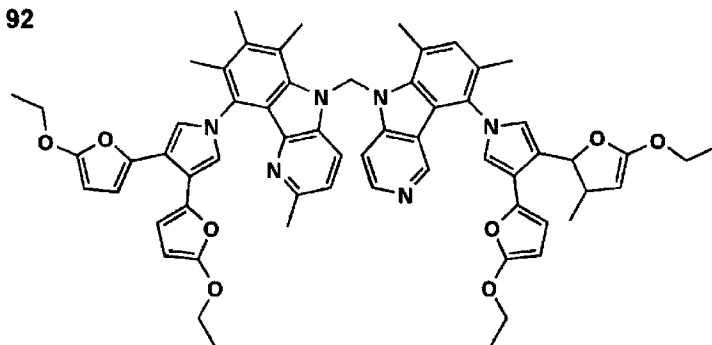
91



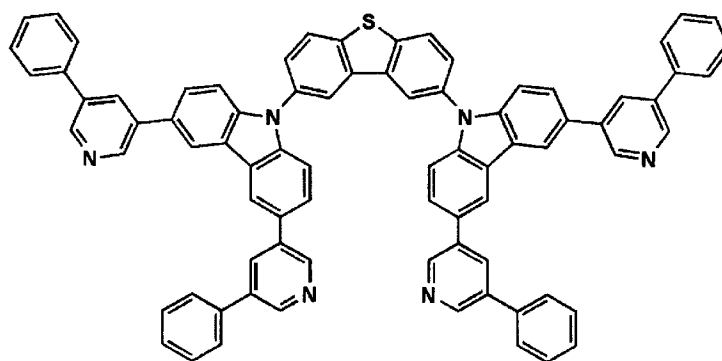
[0101]

[化26]

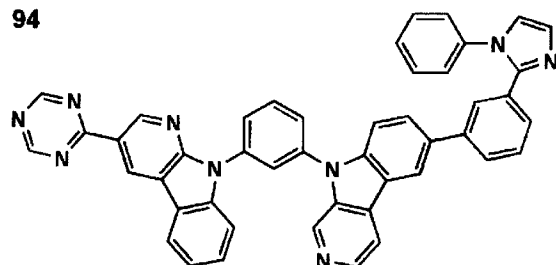
92



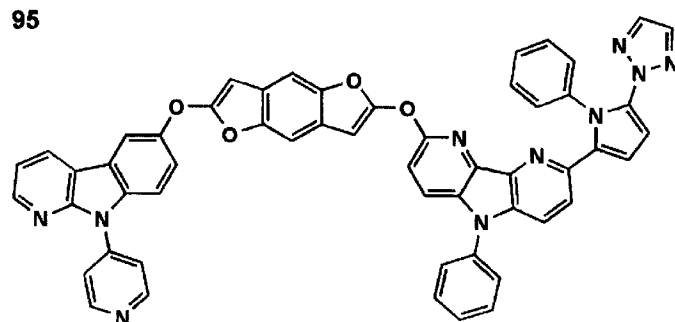
93



94

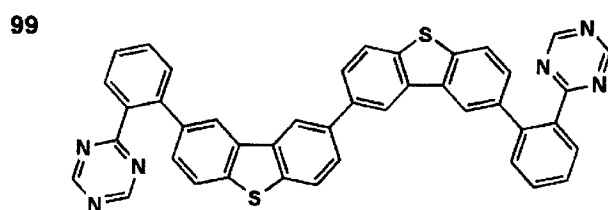
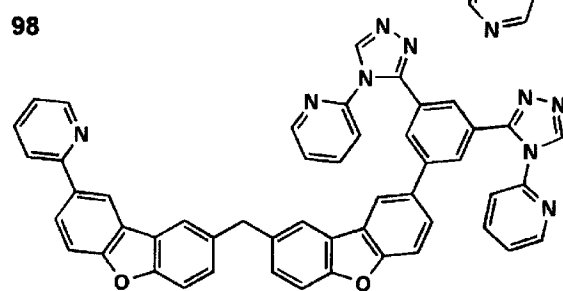
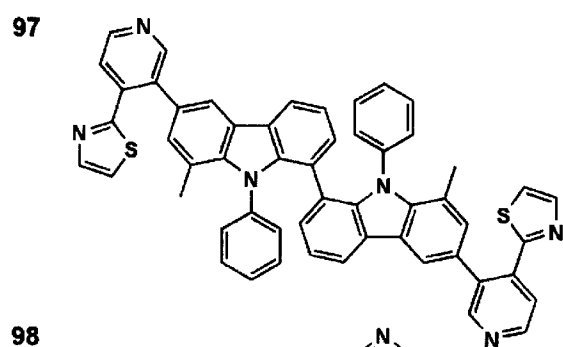
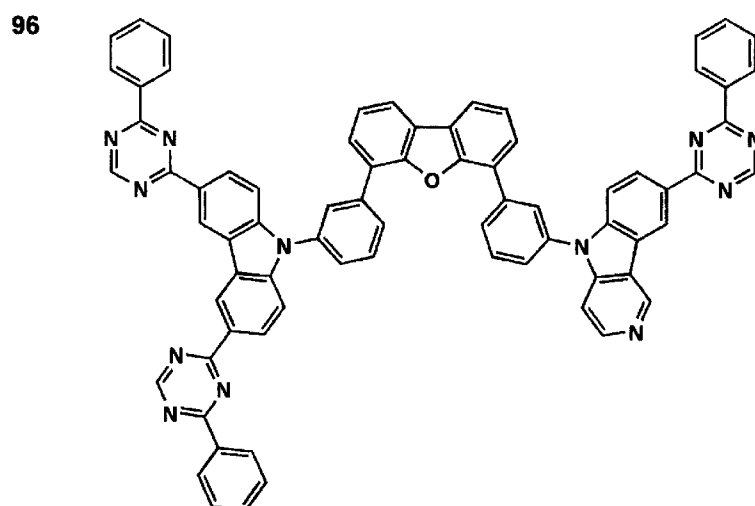


95



[0102]

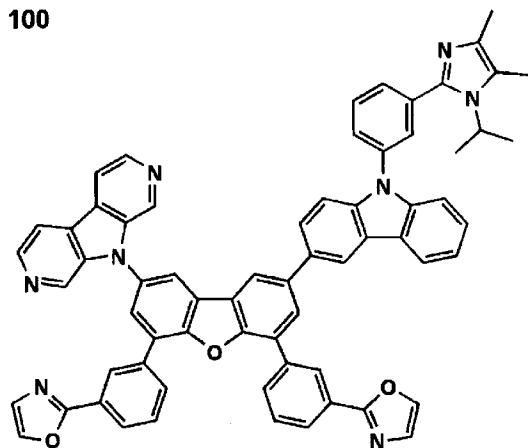
[化27]



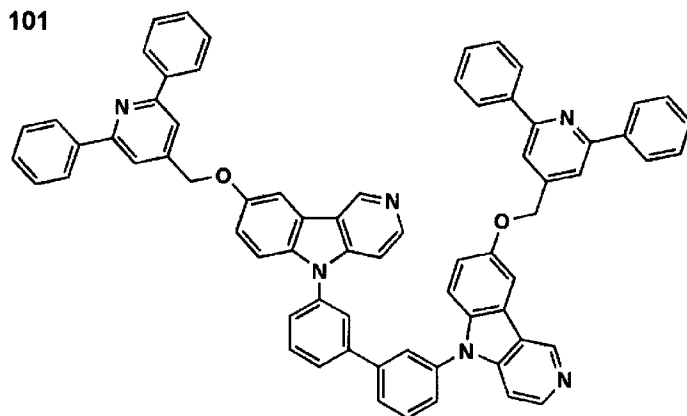
[0103]

[化28]

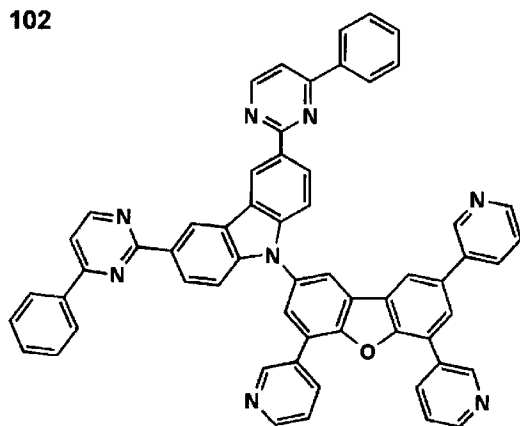
100



101



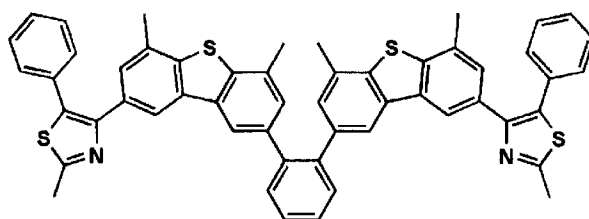
102



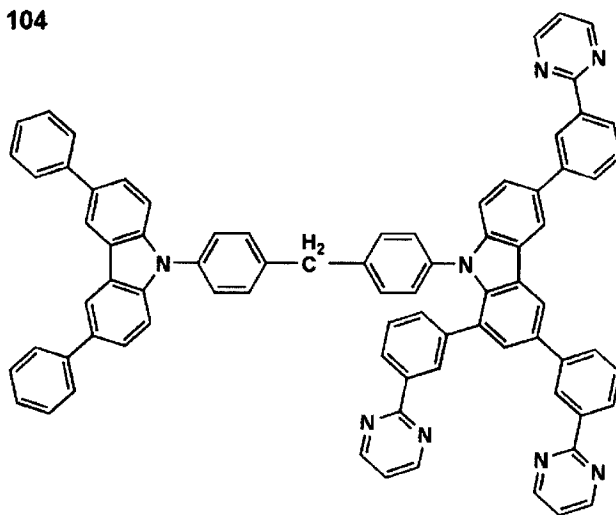
[0104]

[化29]

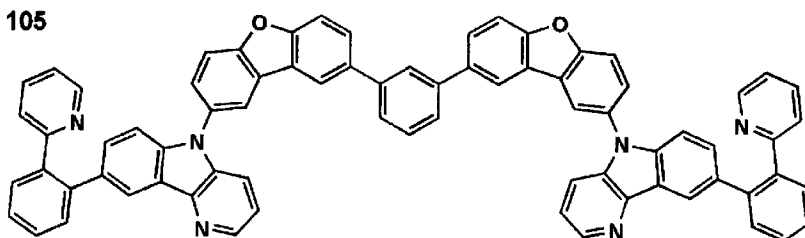
103



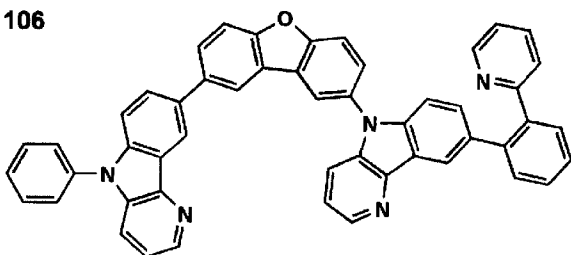
104



105

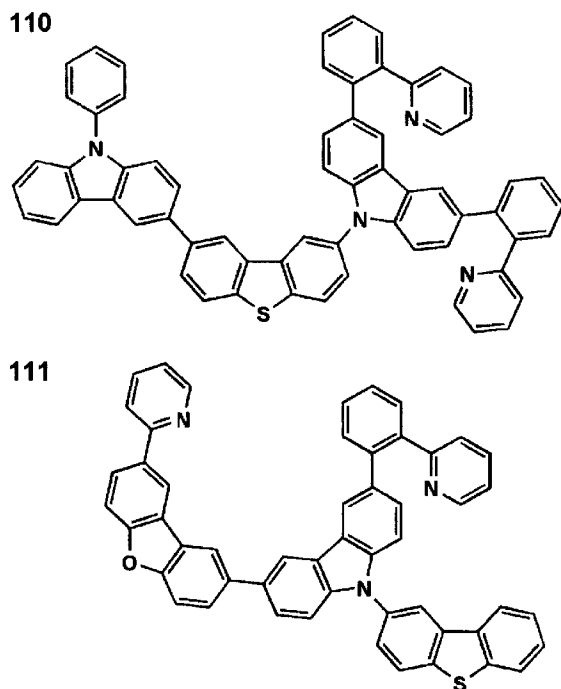


106



[0105]

[化31]



[0107] これらの化合物は、公知の合成法により合成された。

[0108] [透明導電性層：電極]

本発明に係る有機EL素子における透明導電性層としては、インジウムチンオキシド（ITO）、 SnO_2 、 ZnO 等の導電性光透過性材料が好ましく用いられる。また、 IDIXO （ $\text{In}_2\text{O}_3-\text{ZnO}$ ）等非晶質で光透過性の導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。本発明においては、透明導電性層は陰極として用いられることが好ましい。陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィー法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は（ $100\mu\text{m}$ 以上程度）、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な物質を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式製膜法を用いることもできる。本発明における透明導電性層の成膜方法としては成膜速度を高める関連から、スパッタリング法が特に好ましい。陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましい。

。更に膜厚は材料にもよるが、通常10～1000nm、好ましくは50～200nmの範囲で選ばれる。

[0109] 〔発光層〕

発光層は、電極または電子輸送層、正孔輸送層から注入されてくる電子および正孔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層との界面であってもよい。

[0110] 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。また、各発光層間には非発光性の中間層を有していることが好ましい。

[0111] 発光層の膜厚の総和は1～100nmの範囲にあることが好ましく、更に好ましくは、より低い駆動電圧を得ることができることから1nm以上、30nm以下である。なお、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。

[0112] 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、更に好ましくは1～20nmの範囲に調整することである。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。

[0113] 発光層の形成には、後述する発光材料やホスト化合物を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜形成方法により製膜して形成することができる。

[0114] 各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を同一発光層中に混合して用いてもよい。

[0115] 発光層の構成として、ホスト化合物、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。

[0116] 〈ホスト化合物〉

本発明の有機EL素子の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。更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。

[0117] 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、または複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子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。

[0118] 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。

[0119] 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。

[0120] 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が挙げられる。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2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同20

02-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-302516号公報、同2002-305083号公報、同2002-305084号公報、同2002-308837号公報等が挙げられる。

[0121] 〈発光材料〉

次に、発光材料について説明する。

[0122] 本発明に適用可能な発光材料としては、蛍光性化合物、燐光発光材料（燐光性化合物、燐光発光性化合物等ともいう）を用いることができる。

[0123] 燐光発光材料とは、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。

[0124] 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材料を用いる場合、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）が達成できればよい。

[0125] 燐光発光材料の発光の原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーを燐光発光材料に移動させることで燐光発光材料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材料がキャリアトラップとなり、燐光発光材料上でキャリアの再結合が起こり燐光発光材料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が、いずれの場合においても、燐光発光材料の励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

[0126] 燐光発光材料は、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができるが、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、更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。

[0127] 有機EL素子には、蛍光発光体を用いることもできる。蛍光発光体（蛍光性ドーパント）の代表例としては、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、又は希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

[0128] また、従来公知のドーパントも本発明に用いることができ、例えば、国際公開第00/70655号明細書、特開2002-280178号公報、同2001-181616号公報、同2002-280179号公報、同2001-181617号公報、同2002-280180号公報、同2001-247859号公報、同2002-299060号公報、同2001-313178号公報、同2002-302671号公報、同2001-345183号公報、同2002-324679号公報、国際公開第02/15645号明細書、特開2002-332291号公報、同2002-50484号公報、同2002-332292号公報、同2002-83684号公報、特表2002-540572号公報、特開2002-117978号公報、同2002-338588号公報、同2002-170684号公報、同2002-352960号公報、国際公開第01/93642号明細書、特開2002-50483号公報、同2002-100476号公報、同2002-173674号公報、同2002-359082号公報、同2002-175884号公報、同2002-363552号公報、同2002-184582号公報、同2003-7469号公報、特表2002-525808号公報、特開2003-7471号公報、特表2002-525833号公報、特開2003-31366号公報、同2002-226495号公報、同2002-234894号公報、同2002-235076号公報、同2002-241751号公報、同2001-319779号公報、同

2001-319780号公報、同2002-62824号公報、同2002-100474号公報、同2002-203679号公報、同2002-343572号公報、同2002-203678号公報等が挙げられる。

[0129] 本発明においては、少なくとも一つの発光層に2種以上の発光材料を含有していてもよく、発光層における発光材料の濃度比が発光層の厚さ方向で変化していてもよい。

[0130] [中間層]

各発光層間に非発光性の中間層（非ドープ領域等ともいう）を設ける場合について説明する。

[0131] 非発光性の中間層とは、複数の発光層を有する場合、その発光層間に設けられる層である。非発光性の中間層の膜厚としては1～20nmの範囲にあるのが好ましく、更には3～10nmの範囲にあることが隣接発光層間のエネルギー移動等相互作用を抑制し、且つ素子の電流電圧特性に大きな負荷を与えないということから好ましい。

[0132] この非発光性の中間層に用いられる材料としては、発光層のホスト化合物と同一でも異なってもよいが、隣接する2つの発光層の少なくとも一方の発光層のホスト材料と同一であることが好ましい。

[0133] 非発光性の中間層は、非発光層、各発光層と共通の化合物（例えば、ホスト化合物等）を含有していてもよく、各々共通ホスト材料（ここで、共通ホスト材料が用いられるとは、燐光発光エネルギー、ガラス転移点等の物理化学的特性が同一である場合やホスト化合物の分子構造が同一である場合等を示す。）を含有することにより、発光層－非発光層間の層間の注入障壁が低減され、電圧（電流）を変化させても正孔と電子の注入バランスが保ちやすいという効果を得ることができる。更に、非ドープ発光層に各発光層に含まれるホスト化合物と同一の物理的特性または同一の分子構造を有するホスト材料を用いることにより、従来の有機EL素子作製の大きな問題点である素子作製の煩雑さをも併せて解消することができる。

[0134] ホスト材料は、キャリアの輸送を担うため、キャリア輸送能を有する材料

が好ましい。キャリア輸送能を表す物性としてキャリア移動度が用いられるが、有機材料のキャリア移動度は一般的に電界強度に依存性が見られる。電界強度依存性の高い材料は正孔と電子注入・輸送バランスを崩しやすいため、中間層材料、ホスト材料は移動度の電界強度依存性の少ない材料を用いることが好ましい。

[0135] また、一方では、正孔や電子の注入バランスを最適に調整するためには、非発光性の中間層は後述する阻止層、即ち正孔阻止層、電子阻止層として機能することも好ましい態様として挙げられる。

[0136] [注入層：電子注入層、正孔注入層]

注入層は必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記の如く陽極と発光層または正孔輸送層の間、および陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。

[0137] 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有機層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。

[0138] 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。

[0139] 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。本発明に係わる電子注入層は金属層とアルカリ金属ハライド層との積層構成か酸化物層と金属層とアルカリ金属ハライド層との積層構成が好ましく、

金属酸化物にアルカリ金属がドーピングされていても良い。金属酸化物にドーピングするアルカリ金属の量は1～10質量%が好ましい。上記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。

[0140] 〔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構成層である。例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、および「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の237頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層がある。

[0141] 正孔阻止層とは、広い意味では、電子輸送層の機能を有し、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。

[0142] 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し、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。本発明に係る正孔阻止層、電子輸送層の膜厚としては好ましくは3～100 nmであり、更に好ましくは5～30 nmである。

[0143] 〔正孔輸送層〕

正孔輸送層とは、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。

[0144] 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、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、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。

[0145] 正孔輸送材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物およびスチリルアミン化合物、特に芳香族第3級アミン化合物を用いることが好ましい。

[0146] 芳香族第3級アミン化合物およびスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル、N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4' -ジアミン(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、更には米国特許第5, 06

1, 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。

[0147] 更に、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。

[0148] また、特開平11-251067号公報、J. Huang et al. 著文献(Applied Physics Letters 80(2002), p. 139)に記載されているような、いわゆる、p型正孔輸送材料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。

[0149] 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の範囲内であり、好ましくは5~200nmの範囲内である。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。

[0150] また、不純物をドーピングしたp性の高い正孔輸送層を用いることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。

[0151] このようなp性の高い正孔輸送層を用いることにより、より低消費電力の素子を作製することができる観点から好ましい。

[0152] [電子輸送層]

電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層または複数層設けることができる。

[0153] 従来、単層の電子輸送層、および複数層とする場合は発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その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、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およびアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。更に、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、電子輸送材料として用いることができる。更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。

[0154] 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（ Alq_3 ）、トリス（5,7-ジクロロ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5,7-ジブromo-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）亜鉛（ Znq ）等、およびこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、GaまたはPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。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、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様にn型-Si、n型-

S i C等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

[0155] 電子輸送層は、上記電子輸送材料を、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。電子輸送層の膜厚については、特に制限はないが、通常は5 nm～5 μm程度、好ましくは5～200 nm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。

[0156] また、不純物をドーピングしたn性の高い電子輸送層を用いることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、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。

[0157] 本発明においては、このようなn性の高い電子輸送層を用いることが、より低消費電力の素子を作製することができる観点から好ましい。

[0158] [対向電極：陽極または陰極]

対向電極としては、前述の透明導電性を備えた材料を用いること、あるいは金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極物質として用いることもできる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム／銅混合物、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム (Al_2O_3) 混合物、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。対向電極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜形成させることにより、作製することができる。また、対向電極としてのシート抵抗は、数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常10 nm～5 μm、好ましくは50 nm～200 nmの範囲で選ばれる。

[0159] 《用途》

本発明の有機EL素子は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源と

して用いることができる。発光光源として、例えば、家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、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いが、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。

実施例

[0160] 以下、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例において「部」あるいは「%」の表示を用いるが、特に断りがない限り「質量部」あるいは「質量%」を表す。

[0161] 実施例 1

《有機EL素子の作製》

以下に説明する有機EL素子1～19は、発光面積が5 cm×5 cmとなるように作製した。

[0162] [有機EL素子1の作製]

下記の方法に従って、図1A及び図1Bに記載の構成からなる有機EL素子1の作製を作製した。

[0163] (陽極の形成)

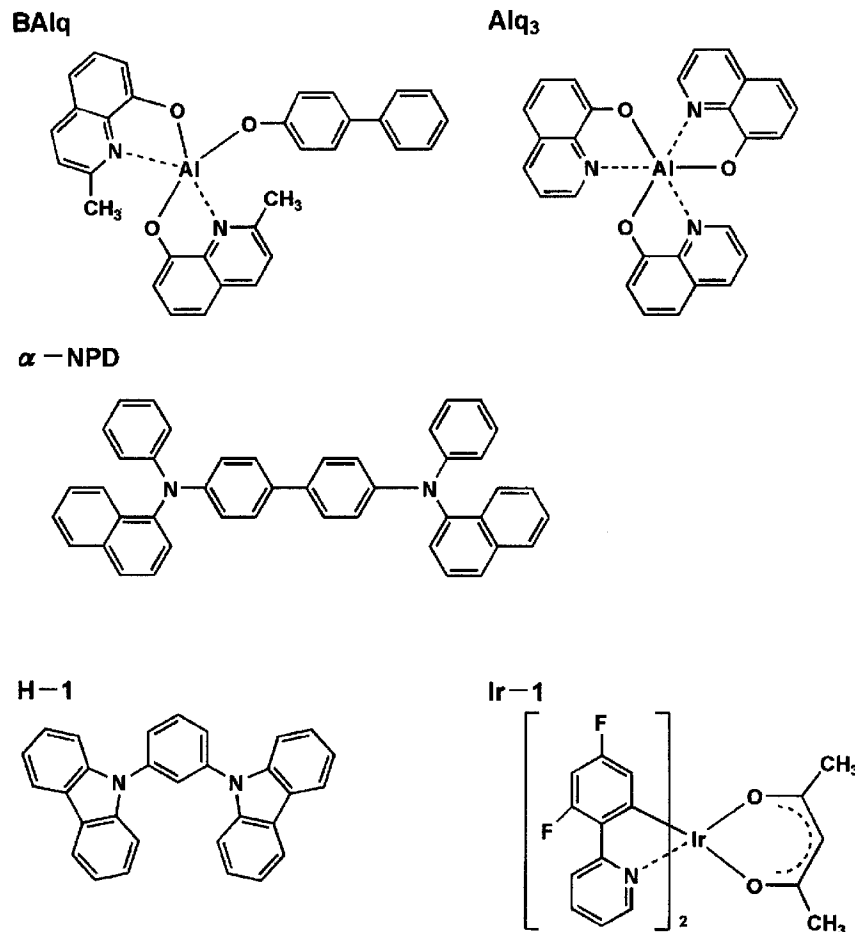
透明な基板10の上に、厚さ100 nmとなる条件でアルミニウムをスパッタ法で成膜、パターニングして、アルミニウム層から成る陽極9を形成した。次いで、アルミニウム層(陽極9)を設けた基板10を、イソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

[0164] (正孔注入層～電子輸送層の形成)

このアルミニウム層(陽極9)を設けた基板10を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、タンタル製抵抗加熱ボードに、 α -NPD、H1、Ir-1、BAIq、Alq₃をそれぞれ装填し、真空蒸着装置の第1真空槽に取り付けた。

[0165] 更に、タングステン製抵抗加熱ボードにフッ化カリウム、アルミニウムを入れ、真空蒸着装置の第2真空槽に取り付けた。

[0166] [化32]



[0167] まず、第1真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、α-NPDの入った前記加熱ボードに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ でアルミニウム層上に膜厚 20 nm の正孔注入層8／正孔輸送層7を設けた。

[0168] 更に、H1の入った前記加熱ボードとIr-1の入ったボードをそれぞれ独立に通電して、発光ホストであるH1と発光ドーパントであるIr-1の蒸着速度が $100:6$ になるように調節し、膜厚 30 nm の発光層6を設けた。

[0169] 次いで、BAlqの入った前記加熱ボードに通電して加熱し、蒸着速度 0

、 $1\text{ nm/秒} \sim 0.2\text{ nm/秒}$ で膜厚 10 nm の正孔阻止層を設けた。更に、 Alq_3 の入った前記加熱ボードに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 20 nm の電子輸送層5を設けた。

[0170] (電子注入層の形成)

次に、電子輸送層5まで成膜した素子を真空のまま第2真空槽に移し、第2真空槽を $4 \times 10^{-4}\text{ Pa}$ まで減圧した後、フッ化カリウムの入った前記加熱ボードに通電して、蒸着速度 $0.1 \sim 0.1\text{ nm/秒} \sim 0.2\text{ nm/秒}$ で膜厚 2 nm のフッ化カリウム層を設けた。

[0171] 次いで、アルミニウムの入った前記加熱ボードに通電して、蒸着速度 $0.1 \sim 0.1\text{ nm/秒} \sim 0.2\text{ nm/秒}$ で膜厚 10 nm のアルミニウム層を設け、フッ化カリウム層とアルミニウム層から成る電子注入層4を設けた。

[0172] (透明導電性層(陰極)の形成)

次に、電子注入層4まで成膜した素子を真空のまま予めITOターゲットを装着した市販の平行平板スパッタリング装置に移し、スパッタリング装置のチャンバー内を $5 \times 10^{-3}\text{ Pa}$ まで減圧した後、窒素ガスと酸素ガスを流しながら、DC出力 500 W で放電し、成膜速度 10 nm/秒 で膜厚 100 nm のITO導電層の透明導電性層(陰極)2を形成した。

[0173] (補助電極の作製)

ITO導電層上に、IncTec社製TEC-PA-040の銀ペーストを用いて、スクリーン印刷法を用いて、線幅 $100\text{ }\mu\text{m}$ 、厚み $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 、ピッチ $1,000\text{ }\mu\text{m}$ の間隔で図1A及び図1Bに示すようなライン状の金属パターンを描画し、得られた金属パターンを 150°C で30分間焼成して、補助電極1を作製した。

[0174] (素子の封止)

最後に、上記で得られた素子をガラスケースで覆い、厚み $300\text{ }\mu\text{m}$ のガラス基板を封止用基板として用い、周囲にシール材としてエポキシ系光硬化型接着剤(東亜合成社製ラックストラックLC0629B)を適用し、これを前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して、硬化

・封止して、トップエミッション型の有機EL素子1を得た。

[0175] 〔有機EL素子2の作製〕

（陽極～電子注入層の形成）

上記有機EL素子1の作製と同様にして、陽極9～電子注入層4まで成膜した。

[0176] （補助電極の作製）

ITO導電層上に、IncTec社製TEC-PA-040の銀ペーストを用いて、エアロゾルジェット印刷法によるエアロゾルジェット印刷装置である、M³D（米国登録商標）装置を用いて、線幅50μm、厚み1μm、ピッチ1,000μmの間隔で図1A及び図1Bに示すようなライン状の金属パターンを描画し、得られた金属パターンを150℃で30分間焼成して、補助電極1を作製した。

[0177] （素子の封止）

有機EL素子1と同様の方法で封止を行い、トップエミッション型の有機EL素子2を作製した。

[0178] 〔有機EL素子3の作製〕

（陽極～電子注入層の形成）

上記有機EL素子1の作製と同様にして、陽極9～電子注入層4まで成膜した。

[0179] （透明保護層の形成）

電子注入層4まで成膜した素子を真空のまま第1真空槽に戻し、第1真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、Alq₃の入った前記加熱ボードに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/N秒～0.2nm/秒で膜厚30nmの図2A及び図2Bに示す透明保護層3を設けた。

[0180] （補助電極の作製）

有機EL素子2と同様に、エアロゾルジェット印刷法で線幅50μm、厚み1μm、ピッチ1,000μmの間隔で、図2A及び図2Bで示すようなライン状の補助電極1を作製した。

[0181] (素子の封止)

有機EL素子1と同様の方法で封止を行い、トップエミッション型の有機EL素子3を得た。

[0182] [有機EL素子4の作製]

(陽極9～電子注入層4の形成)

上記有機EL素子1の作製と同様にして、陽極9～電子注入層4まで成膜した。

[0183] (透明保護層の形成)

電子注入層4まで成膜した素子を真空のまま第1真空槽に戻した後、電子注入層4の上にステンレス鋼製のマスクが配置されるように装置外部からリモートコントロールで設置した。このとき使用したマスクは400 μ m間隔で幅50 μ mのライン状の穴が空いている。次に、Alq₃の入った前記加熱ボードに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒～0.2nm/秒で上記マスク越しに成膜し、膜厚30nmの図3A及び図3Bに示すパターンでパターニングされた透明保護層3を設けた。

[0184] (補助電極の作製)

有機EL素子2で用いたのと同様のエアロゾルジェット印刷法で、線幅50 μ m、厚み1 μ m、ピッチ1,000 μ mの間隔で、図3A及び図3Bに示すライン状の補助電極1を透明保護層3がパターニングされている領域上に形成した。

[0185] (素子の封止)

有機EL素子1と同様の方法で封止を行い、トップエミッション型の有機EL素子4を得た。

[0186] [有機EL素子5～14の作製]

上記有機EL素子4の作製において、透明保護層3のパターニング間隔と膜厚を、表1に示す条件にそれぞれ変更した以外は同様にして、トップエミッション型の有機EL素子5～14を得た。

[0187] [有機EL素子15～17の作製]

上記有機EL素子13の作製において、透明保護層の形成材料を、Alq₃に代えて表1に示す化合物(99)、化合物(94)、化合物(10)にそれぞれ変更した以外は同様にして、トップエミッション型の有機EL素子15～17を得た。

[0188] [有機EL素子18の作製]

(陽極～電子注入層の形成)

上記有機EL素子1の作製と同様にして、陽極9～電子注入層4まで成膜した。

[0189] (透明保護層の形成)

電子注入層4まで成膜した素子を、真空のまま第1真空槽に戻した後、電子注入層4の上にステンレス鋼製のマスクが配置されるように装置外部からリモートコントロールで設置した。このとき使用したマスクは1,000μm間隔で幅50μmのライン状の穴が空いている。次に、化合物(10)の入った前記加熱ボードに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒～0.2nm/秒で上記マスク越しに成膜し、膜厚150nmで図4A及び図4Bに示すパターンでパターニングされた透明保護層3を設けた。

[0190] (補助電極の作製)

有機EL素子2の作製と同様にして、エアロゾルジェット印刷法で線幅50μm、厚み1μm、ピッチ1,000μmの間隔で、図4A及び図4Bに示すライン状の補助電極1を透明保護層3がパターニングされていない領域上に形成した。

[0191] (素子の封止)

有機EL素子1と同様な方法で封止して、トップエミッション型の有機EL素子18を得た。

[0192] [有機EL素子19の作製]

(陽極～電子注入層の形成)

上記有機EL素子1の作製と同様にして、陽極9～電子注入層4まで成膜した。

[0193] (透明保護層の形成)

電子注入層 4 まで成膜した素子を、真空のまま第 1 真空槽に戻した後、電子注入層 4 の上にステンレス鋼製のマスクが配置されるように装置外部からリモートコントロールで設置した。このとき 1, 000 μm 間隔で幅 50 μm のライン状の穴が空いているマスクを 2 枚用意して、2 枚のマスクをクロスさせて重ねて使用した。次に、化合物 (10) の入った前記加熱ボードに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 $\text{nm}/\text{秒} \sim 0.2 \text{ nm}/\text{秒}$ で上記マスク越しに成膜し、膜厚 150 nm のパターニングされた透明保護層 3 を設けた。

[0194] (補助電極の作製)

有機 EL 素子 2 に記載したのと同様のエアロゾルジェット印刷法で、線幅 50 μm 、厚み 1 μm 、ピッチ 1, 000 μm の間隔で、図 5 A 及び図 5 B に示す格子状の補助電極を透明保護層がパターニングされていない領域上に作製した。

[0195] (素子の封止)

有機 EL 素子 1 と同様な方法で封止して、トップエミッション型の有機 EL 素子 19 を得た。

[0196] [有機 EL 素子 20、21 の作製]

上記有機 EL 素子 19 の作製において、透明保護層 3 の形成に用いた化合物 (10) に代えて、それぞれ化合物 (4)、化合物 (16) を用い以外は同様にして、有機 EL 素子 20、21 を作製した。

[0197] 《有機 EL 素子の評価》

上記作製した各有機 EL 素子について、下記の方法に従って発光効率及び発光寿命の評価を行った。

[0198] [発光効率の測定]

上記作製した各有機 EL 素子に対し、2.5 mA/cm^2 定電流を流したときの外部取り出し量子効率 (%) を測定した。なお、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。

[0199] 得られた外部取り出し量子効率 (%) の測定結果を基に、有機 EL 素子 1

の外部取り出し量子効率（％）を１００としたときの相対値を求め、これを発光効率の尺度とした。尚、外部量子効率の相対値が大きいほど発光効率が高く、好ましい結果であることを表す。

[0200] 〔電圧の評価〕

上記で作製した各有機ＥＬ素子に対し、正面輝度が１０００ｃｄ／ｍ²となるときの電圧を各素子の電圧とした。尚、電圧の数値が小さいほど、好ましい結果であることを表す。

[0201] 以上により得られた結果を、表１に示す。

[0202]

[表1]

実施例 番号	実施例の構成					評価結果		備 考
	補助電極		透明保護層	電圧				
	形成方法	描画 パターン		材料	パターンニング 有無	パターンニング 間隔(μm)	膜厚 (nm)	
1	スクリーン印刷法	図 1	—	—	—	1.0	23.1	比 較
2	エアロゾルジェット印刷法	図 1	—	—	—	2.4	9.8	本発明
3	エアロゾルジェット印刷法	図 2	Alq3	なし	—	2.7	8.7	本発明
4	エアロゾルジェット印刷法	図 2	Alq3	あり	400	3.7	6.2	本発明
5	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	6000	3.7	6.0	本発明
6	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	500	4.0	5.7	本発明
7	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	1000	4.2	5.6	本発明
8	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	2000	4.0	5.7	本発明
9	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	5000	4.0	5.8	本発明
10	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	1000	4.3	5.4	本発明
11	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	1000	4.6	5.1	本発明
12	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	1000	4.6	5.1	本発明
13	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	1000	4.7	5.0	本発明
14	エアロゾルジェット印刷法	図 3	Alq3	あり	1000	4.6	5.0	本発明
15	エアロゾルジェット印刷法	図 3	化合物(99)	あり	1000	4.9	4.7	本発明
16	エアロゾルジェット印刷法	図 3	化合物(94)	あり	1000	5.3	4.4	本発明
17	エアロゾルジェット印刷法	図 3	化合物(10)	あり	1000	4.7	4.9	本発明
18	エアロゾルジェット印刷法	図 4	化合物(10)	あり	1000	6.4	3.6	本発明
19	エアロゾルジェット印刷法	図 5	化合物(10)	あり	1000	6.4	3.3	本発明
20	エアロゾルジェット印刷法	図 5	化合物(4)	あり	1000	5.4	3.8	本発明
21	エアロゾルジェット印刷法	図 5	化合物(16)	あり	1000	5.3	3.9	本発明

[0203] 表 1 に記載の結果より明らかな様に、本発明の金属パターン形成方法で形成した補助電極を有する有機 EL 素子は、比較例に対し、発光効率及び発光

寿命に優れていることが分かる。

[0204] 実施例 2

《有機 EL 素子の作製》

陽極をアルミニウムから ITO に変更した以外は実施例 1 と同様な層構成の両面発光型有機 EL 素子を作製した。作製した各両面発光型有機 EL 素子においても、本発明の効果が十分にあることを確認した。

産業上の利用可能性

[0205] 本発明の多色燐光発光有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光効率及び発光寿命に優れた特性を有し、表示デバイス、ディスプレイ、各種照明装置に好適に利用できる。

符号の説明

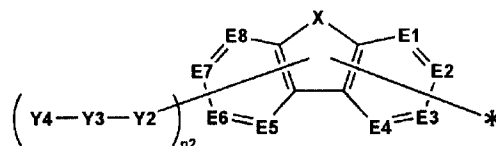
- [0206]
- 1 補助電極
 - 2 透明導電性層（陰極）
 - 3 透明保護層
 - 4 電子注入層
 - 5 電子輸送層
 - 6 発光層
 - 7 正孔輸送層
 - 8 正孔注入層
 - 9 陽極

請求の範囲

- [請求項1] 少なくとも透明導電性層と発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、エアロゾルジェット印刷法で形成した補助電極を有していることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項2] 前記補助電極が光取り出し側の透明導電性層上に形成されていることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項3] 前記透明導電性層と発光層との間に透明保護層を有していることを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項4] 前記透明保護層がパターニングされていることを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項5] 前記透明保護層のパターニングの間隔が $500\mu\text{m}$ 以上、 $2,000\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項1～4のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項6] 前記透明保護層の膜厚が 50nm 以上、 200nm 以下であることを特徴とする請求項1～5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項7] 前記透明保護層が下記一般式(1)で表される基を有する化合物を含有することを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化1]

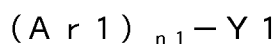
一般式(1)



〔式中、Xは、N(R)、酸素原子、硫黄原子またはSi(R)(R')を表し、E1～E8は、C(R1)または窒素原子を表し、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 1 は、下記一般式 (A) で表される化合物を構成する置換基、結合手または連結基を表す。* 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。Y 3 及び Y 4 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。n 2 は 1 ~ 4 の整数を表す。]

一般式 (A)



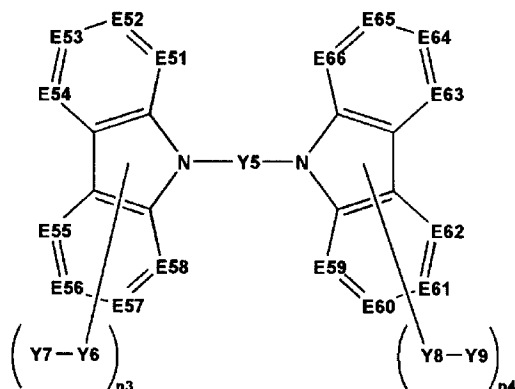
[式中、n 1 は 1 以上の整数を表し、Y 1 は n 1 が 1 の場合は置換基を表し、n 1 が 2 以上の場合は単なる結合手または n 1 価の連結基を表す。A r 1 は上記一般式 (1) で表される基を表し、n 1 が 2 以上の場合、複数の A r 1 は同一でも異なってもよい。但し、前記一般式 (1) で表される基を有する化合物は分子内に 3 環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環を少なくとも 2 つ有する。]

[請求項 8]

前記透明保護層が下記一般式 (2) で表される化合物を有することを特徴とする請求項 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化 2]

一般式 (2)



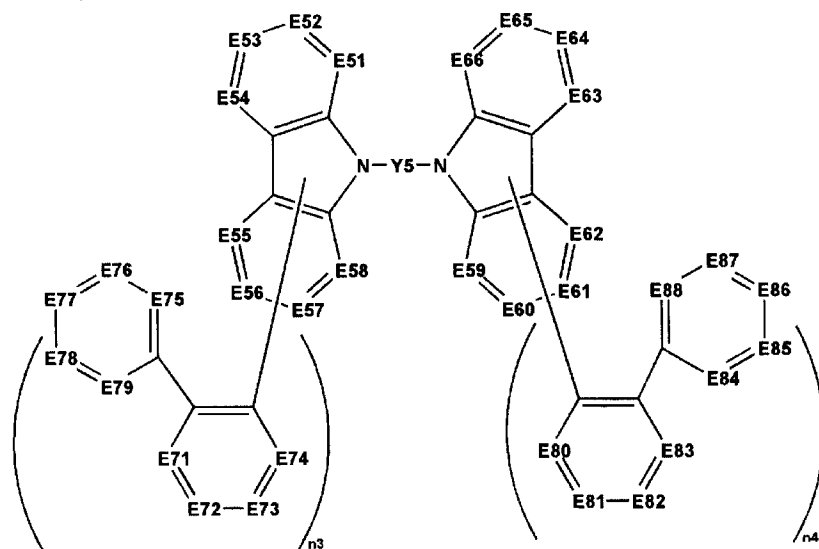
[式中、Y 5 は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基またはそれらの組み合わせからなる 2 価の連結基を表す。E 5 1 ~ E 6 6 は、各々 C (R 3) または窒素原子を表し、R 3 は水素原子または置換基を表す

。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、窒素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。]

[請求項9] 前記透明保護層が下記一般式(3)で表される化合物を有することを特徴とする請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化3]

一般式(3)



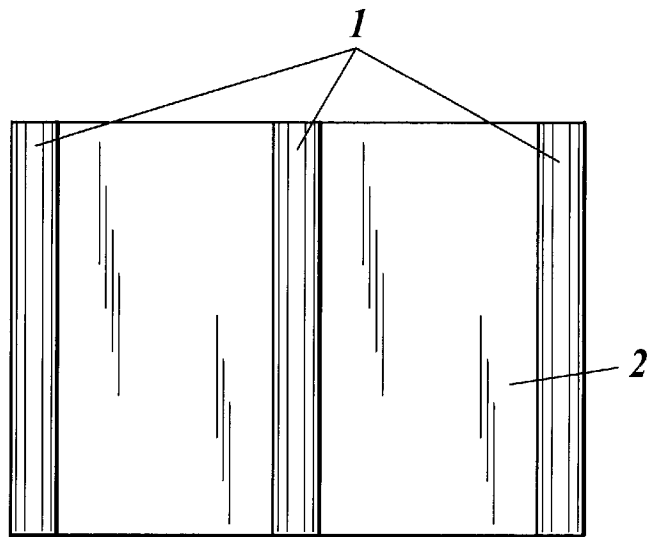
〔式中、Y 5 は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基またはそれらの組み合わせからなる 2 価の連結基を表す。E 5 1～E 6 6、E 7 1～E 8 8 は、各々 C (R 3) または窒素原子を表し、R 3 は水素原子または置換基を表す。但し、E 7 1～E 7 9 の少なくとも 1 つ及び E 8 0～E 8 8 の少なくとも 1 つは窒素原子を表す。n 3 及び n 4 は 0～4 の整数を表すが、n 3 + n 4 は 2 以上の整数である。〕

[請求項10] 前記補助電極が透明保護層のパターニングされていない領域上に形成されていることを特徴とする請求項1～9のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

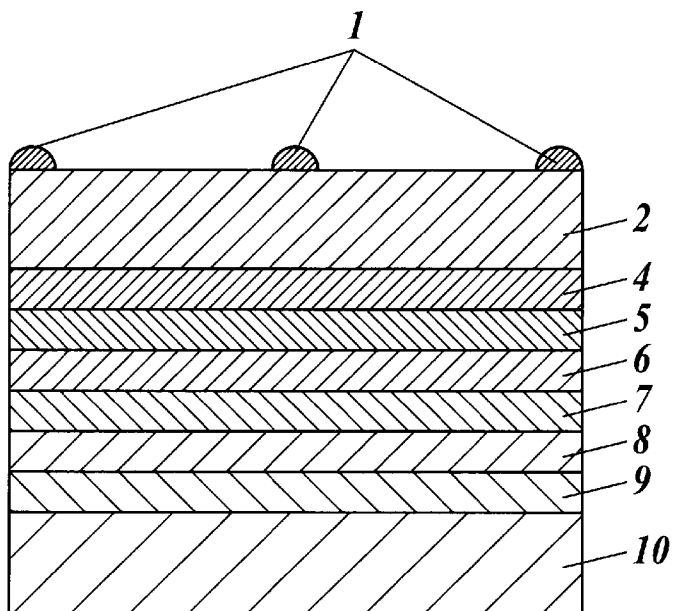
[請求項11] 請求項1～10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセ

ンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

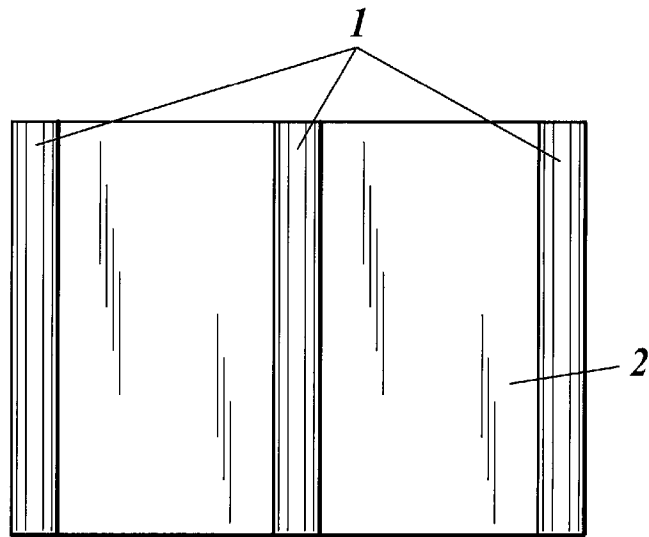
[図1A]

FIG.1A

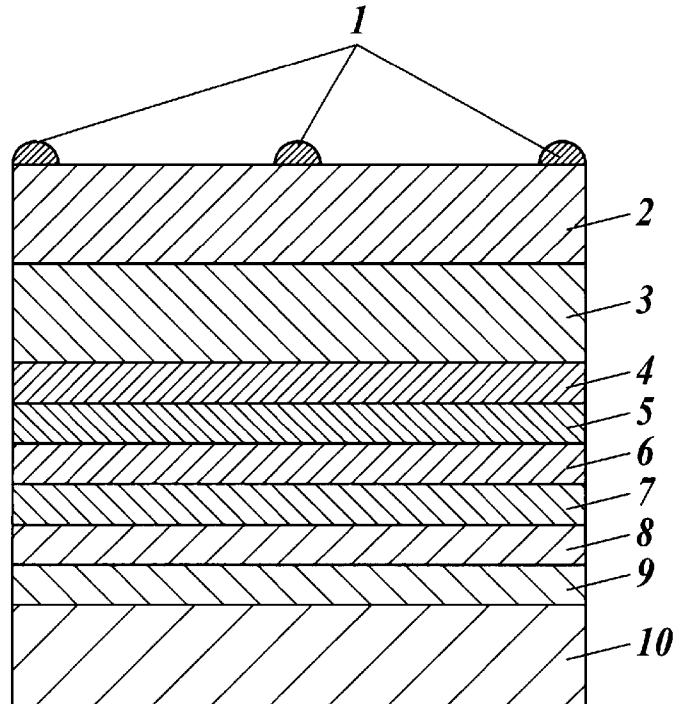
[図1B]

FIG.1B

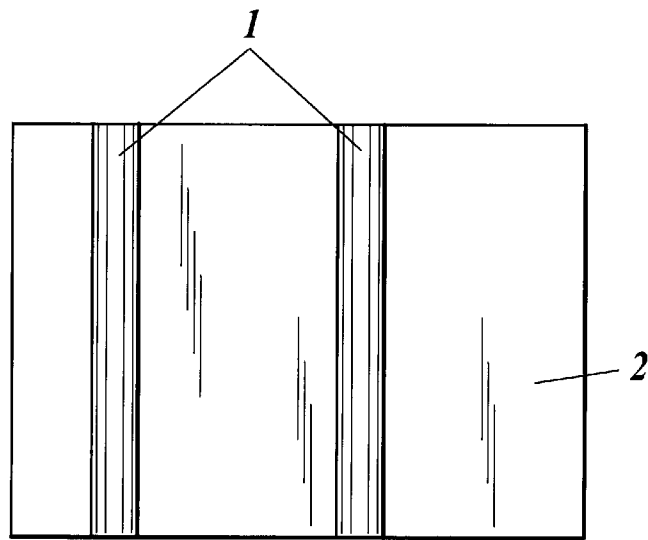
[図2A]

FIG.2A

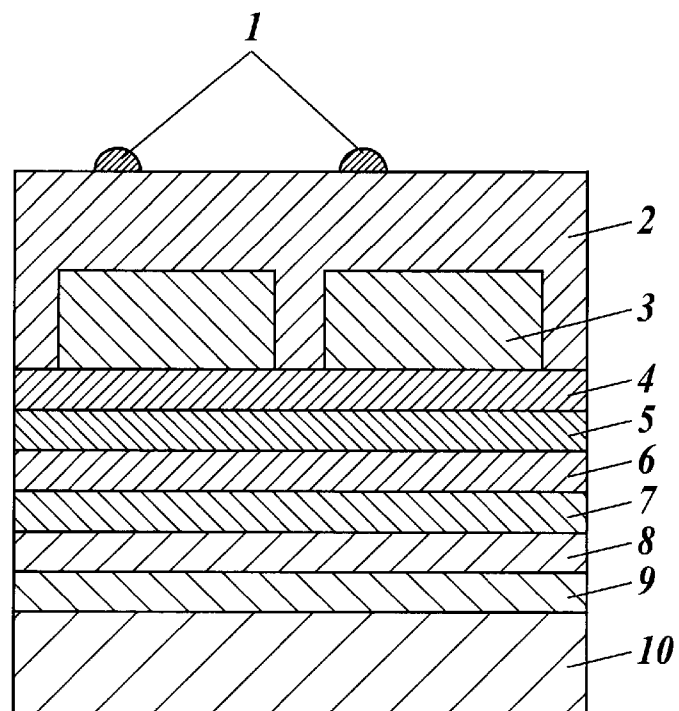
[図2B]

FIG.2B

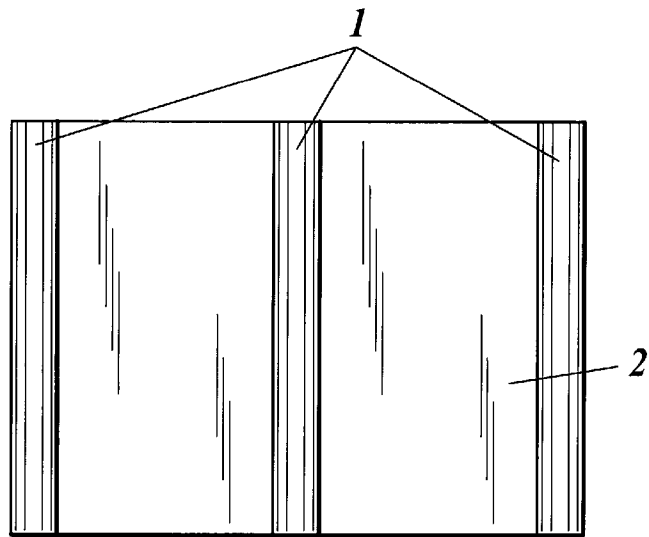
[図3A]

FIG.3A

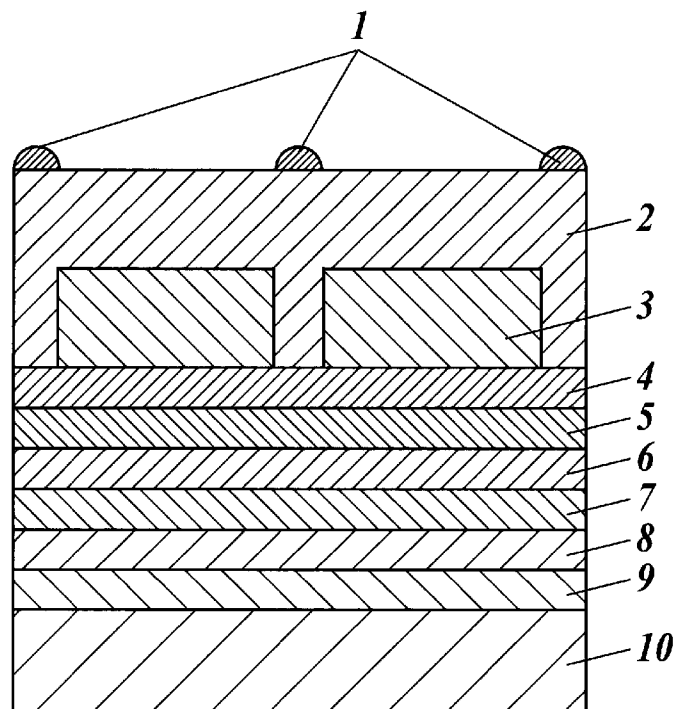
[図3B]

FIG.3B

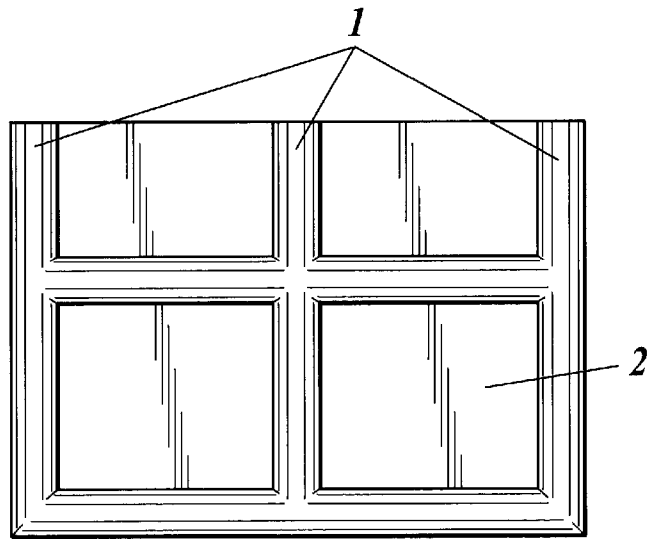
[図4A]

FIG.4A

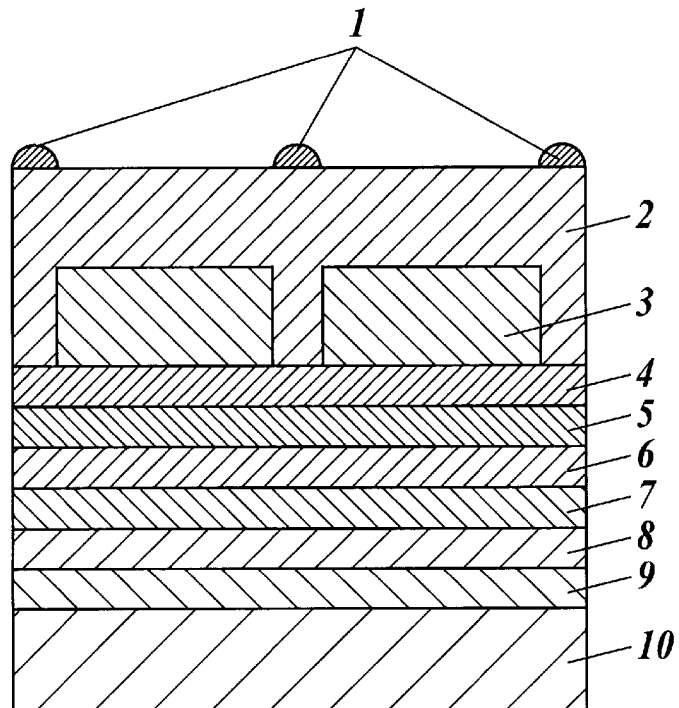
[図4B]

FIG.4B

[図5A]

FIG.5A

[図5B]

FIG.5B

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/050841

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/26(2006.01)i, C07D409/14(2006.01)i, C07D519/00(2006.01)i,
H01L51/50(2006.01)i, H05B33/22(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)

H05B33/26, C07D409/14, C07D519/00, H01L51/50, H05B33/22

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	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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.
P, X	JP 2011-040380 A (Samsung Mobile Display Co., Ltd.), 24 February 2011 (24.02.2011), claim 12; paragraphs [0042], [0050], [0056]; fig. 1 & CN 101997022 A & EP 2284899 A2 & KR 2011-16030 A & KR 101084171 B1 & US 2011/31500 A1	1, 2
E, X	JP 2012-033307 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 16 February 2012 (16.02.2012), paragraphs [0064], [0091]; fig. 13 (Family: none)	1, 2

☒ 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
29 March, 2012 (29.03.12)

Date of mailing of the international search report
10 April, 2012 (10.04.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/050841

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2005-158583 A (Seiko Epson Corp.), 16 June 2005 (16.06.2005), paragraphs [0026], [0050], [0052], [0057]; fig. 5, 8 (Family: none)	1, 2 3-11
Y	JP 2005-158693 A (Samsung SDI Co., Ltd.), 16 June 2005 (16.06.2005), paragraphs [0037], [0043], [0044], [0054] to [0057]; fig. 4 to 6 & CN 1620216 A & CN 1620216 B & KR 2005-49163 A & KR 10-563058 B1 & US 2005/151468 A1 & US 7541735 B2	3-6, 10
Y	JP 2007-265792 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 11 October 2007 (11.10.2007), paragraphs [0018] to [0061]; fig. 1 & US 2007/228942 A1 & US 7687987 B2	3,
Y	JP 2010-251675 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 04 November 2010 (04.11.2010), claim 36; paragraphs [0073], [0132] to [0159], [0170], [0303] & EP 2123733 A2 & US 2009/284138 A1	7-9, 11
A	US 2006/0189113 A1 (Karel Vanheusden), 24 August 2006 (24.08.2006), paragraphs [0010], [0154], [0161] to [0166], [0252], [0253] & EP 1791702 A & WO 2006/076603 A2 & DE 602006017644 D & CA 2594806 A & KR 10-2007-0097500 A & CN 101102905 A & ZA 200701495 A & CN 101870218 A & AT 485171 T & AU 2006204813 A & ES 2353397 T	1

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H05B33/26(2006.01)i, C07D409/14(2006.01)i, C07D519/00(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/22(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. H05B33/26, C07D409/14, C07D519/00, H01L51/50, H05B33/22

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 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 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
P, X	JP 2011-040380 A (三星モバイルディスプレイ株式会社) 2011.02.24, 【請求項 12】, 段落【0042】, 【0050】, 【0056】, 図 1 & CN 101997022 A & EP 2284899 A2 & KR 2011-16030 A & KR 101084171 B1 & US 2011/31500 A1	1, 2
E, X	JP 2012-033307 A (大日本印刷株式会社) 2012.02.16, 段落【0064】, 【0091】, 図 13 (ファミリーなし)	1, 2

☒ 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

2 9 . 0 3 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

1 0 . 0 4 . 2 0 1 2

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)

井 亀 諭

2 0

3 6 1 3

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
X Y	JP 2005-158583 A (セイコーエプソン株式会社) 2005.06.16, 段落【0026】 , 【0050】 , 【0052】 , 【0057】 , 図 5, 図 8 (ファミリーなし)	1, 2 3-11
Y	JP 2005-158693 A (三星エスディアイ株式会社) 2005.06.16, 段落【0037】 , 【0043】、【0044】 , 【0054】 - 【0057】 , 図 4-6 & CN 1620216 A & CN 1620216 B & KR 2005-49163 A & KR 10-563058 B1 & US 2005/151468 A1 & US 7541735 B2	3-6, 10
Y	JP 2007-265792 A (大日本印刷株式会社) 2007.10.11, 段落【0018】 - 【0061】 , 図 1 & US 2007/228942 A1 & US 7687987 B2	3,
Y	JP 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, 【請求項 36】 , 段落【0073】 , 【0132】 - 【0159】、【0170】 , 【0303】 & EP 2123733 A2 & US 2009/284138 A1	7-9, 11
A	US 2006/0189113 A1 (Karel Vanheusden) 2006.08.24, [0010], [0154], [0161]-[0166], [0252], [0253] & EP 1791702 A & WO 2006/076603 A2 & DE 602006017644 D & CA 2594806 A & KR 10-2007-0097500 A & CN 101102905 A & ZA 200701495 A & CN 101870218 A & AT 485171 T & AU 2006204813 A & ES 2353397 T	1