

(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
2017 年 3 月 2 日(02.03.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/033828 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/14 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C09D 11/00 (2014.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/074095
- (22) 国際出願日: 2016 年 8 月 18 日(18.08.2016)
- (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 2015-164779 2015 年 8 月 24 日(24.08.2015) JP
- (71) 出願人: D I C 株式会社(DIC CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1748520 東京都板橋区坂下三丁目 3 5
番 5 8 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 乙木 栄志(OTSUKI Eiji); 〒2858668 千葉県
佐倉市坂戸 6 3 1 番地 D I C 株式会社 総
合研究所内 Chiba (JP). 後藤 雄作(GOTOU Yuu-
saku); 〒2858668 千葉県佐倉市坂戸 6 3 1 番地
D I C 株式会社 総合研究所内 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 河野 通洋(KONO Michihiro); 〒1038233
東京都中央区日本橋三丁目 7 番 2 0 号 D I C
株式会社内 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,
IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR,
LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,
MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH,
PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK,
SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユー
ラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨー
ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,
ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC,
MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM,
ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: INK COMPOSITION FOR ORGANIC SEMICONDUCTOR ELEMENTS, AND ORGANIC SEMICONDUCTOR ELEMENT USING SAME

(54) 発明の名称: 有機半導体素子用インク組成物およびこれを用いた有機半導体素子

(57) Abstract: A layer, formed with a coating film having a leveling agent oriented on the surface thereof, has the leveling agent oriented on the surface portion. It has been found that, in such a case, the surface of such a layer has a reduced level of surface energy because of the presence of the leveling agent, and that, as a result, it is impossible or very difficult to form a layer on the layer formed using a leveling agent by a wet film-forming method. The purpose of the present invention is to provide an ink composition for organic semiconductor elements, which allows for the formation of a suitable film even on a layer having low surface energy. The present invention is an ink composition for organic semiconductor elements, which contains a first organic semiconductor element material, a leveling agent, a first solvent, and an aromatic solvent, wherein the leveling agent is a polymer that contains at least a siloxane monomer as a monomer unit, and the first solvent has a surface tension not higher than 25 mN/m.

(57) 要約: レベリング剤が表面に配向された塗膜より形成された層の表面部にはレベリング剤が配向されている。そうすると、このような層の表面は、レベリング剤の存在により表面エネルギーが小さくなり、その結果、レベリング剤を用いて形成された層上には、湿式成膜法により層形成をすることができない、または非常にしにくい場合があることが判明した。そこで、本発明は、低表面エネルギー層上であっても好適な膜を形成することができる有機半導体素子用インク組成物を提供することを目的とする。第1の有機半導体素子材料、レベリング剤、第1の溶媒、および芳香族溶媒を含み、前記レベリング剤が、少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体であり、前記第1の溶媒の表面張力が25 mN/m以下である、有機半導体素子用インク組成物。

WO 2017/033828 A1

明 細 書

発明の名称：

有機半導体素子用インク組成物およびこれを用いた有機半導体素子

技術分野

[0001] 本発明は、有機半導体素子用インク組成物およびこれを用いた有機半導体素子に関する。

背景技術

[0002] 有機半導体素子は、半導体の性質を有する有機化合物（有機半導体）を用いた電界発光素子である。有機半導体素子は、有機半導体を用いるため、軽量化、大面積化、フレキシブル化等が可能であることから、近年、この分野の研究開発が急速に進められている。なお、有機半導体素子のうち、有機発光素子、有機電界効果トランジスタ、有機太陽電池が特に注目されている。

[0003] 例えば、有機発光素子は、視認性に優れる、視野角依存性が少ない、薄層化が可能である等の観点から、次世代のフラットパネルディスプレイや次世代の照明等として注目されている。

[0004] 有機発光素子は、通常、陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、および陰極を含む。当該有機発光素子に電圧を印加すると、陽極から正孔輸送層に正孔が、陰極から電子輸送層に電子がそれぞれ注入され、次いで、正孔および電子は発光層に注入される。発光層では、注入された正孔および電子が再結合し、この際生じるエネルギーにより発光層中の発光材料が発光する。なお、有機発光素子は、場合により、正孔輸送層および／または電子輸送層を有しない場合がある。また、正孔注入層および電子注入層等の他の層を含む場合がある。

[0005] 近年、有機半導体素子は、素子の大型化および低コスト化等の観点から、有機材料の蒸着等により膜形成を行う乾式成膜に代えて、有機材料を含む塗布液（インク組成物）を塗布し、得られた塗膜を乾燥して膜を形成する湿式成膜法による製造が試みられている。

[0006] 上述の有機発光素子の正孔および電子が層間を移動するという発光メカニズムからも理解されるように、電流密度は膜厚に大きく依存し、膜厚が薄い箇所はリーク電流を誘発するため、有機発光素子を構成する層には平坦性が求められる。有機電界効果トランジスタや太陽電池でも同様に、リーク電流を抑制するため、構成する層には平坦性が求められる。

[0007] しかし、有機半導体素子を構成する層を湿式成膜法により形成しようとすると、その形成方法に起因して平坦性が確保しにくい。このような層の平坦性を実現する方法として、例えば、特許文献1には、有機EL素子の有機層を形成する際に使用される有機EL層形成用塗液に係る発明が記載されている。この際、前記有機EL層形成用塗液は、前記塗液がレベリング剤と発光材料または電荷輸送材料とを含有し、前記レベリング剤（L）の添加量が、Lの粘度（c p）×発光材料または電荷輸送材料に対するLの添加量（w t %）＜200で表される関係式を満たすことを特徴とする。特許文献1には、有機EL層形成用塗液に特定量のレベリング剤を含有させることにより、湿式成膜法により形成される膜の平坦性に起因する発光ムラ等の問題を解決することができる旨が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特開2002-56980号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 特許文献1によれば、湿式成膜法により形成される層が一定の平坦性を有する。より詳細には、レベリング剤が塗布により形成される塗膜表面に配向することで、うねりの発生が防止され、平坦性を実現することができる。

[0010] ここで、レベリング剤が表面に配向された塗膜より形成された層の表面部にはレベリング剤が配向されている。そうすると、このような層の表面は、レベリング剤の存在により表面エネルギーが小さくなり、その結果、レベリ

ング剤を用いて形成された層上には、湿式成膜法により層形成をすることができない、または非常にしにくい場合があることが判明した。

[0011] そこで、本発明は、低表面エネルギー層上であっても好適な膜を形成することができる有機半導体素子用インク組成物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

[0012] 本発明者らは、上記課題を解決すべく、鋭意研究を行った。その結果、有機半導体素子用インク組成物に所定のレベリング剤および所定の溶媒を用いることで、上記課題が解決されうることを見出し、本発明を完成させるに至った。

[0013] すなわち、本発明は、第1の有機半導体素子材料、レベリング剤、第1の溶媒、および芳香族溶媒を含み、前記レベリング剤が、少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体であり、前記第1の溶媒の表面張力が25 mN/m以下である、有機半導体素子用インク組成物に関する。

発明の効果

[0014] 本発明によれば、低表面エネルギー層上であっても好適に膜を形成することができる。

発明を実施するための形態

[0015] 以下、本発明を実施するための形態について詳細に説明する。

[0016] <有機半導体素子用インク組成物>

本形態に係る有機半導体素子用インク組成物は、第1の有機半導体素子材料、レベリング剤、第1の溶媒、および芳香族溶媒を含む。この際、前記レベリング剤は、少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体である。また、前記第1の溶媒の表面張力は25 mN/m以下である。

[0017] レベリング剤を含む有機半導体素子用インク組成物を用いて形成された層は、層表面にレベリング剤が配向されていることからその表面エネルギーが低くなる。このような低表面エネルギー層上に、さらに有機半導体素子用インク組成物を用いて湿式成膜法により層を形成しようとする、塗膜が形成しにくい、または形成することができない。具体的には、有機半導体素子用

インク組成物を塗布した場合、接触角が著しく大きくなり、十分なぬれ性を確保することができないのである。例えば、有機半導体素子が有機発光素子である場合において、低表面エネルギー層が正孔注入層であり、形成しようとする層が正孔輸送層である場合、特許文献1のような有機発光素子用インク組成物により正孔輸送層を形成しようとする、十分なぬれ性がない。そうすると、塗膜自体が形成できず、仮に塗膜を形成できたとしても乾燥して得られる正孔輸送層の表面にはうねりが生じることとなる。その結果、正孔輸送層－正孔注入層および／または正孔輸送層－発光層（正孔輸送層上に形成される）の層間の密着性が低くなり、有機発光素子の性能が低下する。

[0018] 他方、十分なぬれ性を実現するため、表面エネルギーが低い溶媒を用いた有機半導体素子用インク組成物により層形成しようとする、有機半導体素子材料を溶解しにくい、または溶解できない場合があり、有機半導体素子用インク組成物は、その適用範囲が著しく狭くなる、または適用することができなくなる。

[0019] これに対し、本形態に係る有機半導体素子用インク組成物は、低表面エネルギー層上であっても好適に膜を形成することができる。

[0020] この理由は必ずしも明らかではないが、以下のメカニズムによるものと考えられる。すなわち、有機半導体素子用インク組成物が表面張力 25 mN/m 以下である第1の溶媒を含むことにより、有機半導体素子用インク組成物のぬれ性が向上し、低表面エネルギー層上であっても好適に塗布することが可能になる。また、有機半導体素子用インク組成物が、有機半導体素子材料の溶解性に優れる芳香族溶媒をさらに含むことから、有機半導体素子材料を好適に溶解することができる。すなわち、溶媒として、第1の溶媒および芳香族溶媒を併用することで、ぬれ性と有機半導体素子材料の溶解性との両立を図ることができるのである。

[0021] そして、レベリング剤が少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体であることにより、低表面エネルギー層上での層形成をより確実なものとすることができる。具体的には、表面エネルギーの小さい第1の

溶媒は、芳香族溶媒よりも相対的に蒸発しやすい。この場合、有機半導体素子用インク組成物を用いて形成された塗膜を乾燥しようとする、第1の溶媒が優先して塗膜から蒸発しうる。このような状況で乾燥工程が進行すると、その終盤においては、塗膜中にはぬれ性に寄与する第1の溶媒がなく、またはほとんどなく、最終的に得られる層にうねりが生じる可能性がある。しかしながら、前記レベリング剤は、シロキサン構造を有することから塗膜表面に配向しやすく、第1の溶媒および芳香族溶媒の蒸発速度を制御することができる。より詳細には、塗膜表面に配向するレベリング剤が第1の溶媒の優先的な蒸発を抑制または防止することができる。これにより、塗膜の乾燥工程において、第1の溶媒および芳香族溶媒が同程度に蒸発することとなり、形成される層は平坦性に優れるものとなりうる。なお、上記レベリング剤の作用メカニズムは推測のものであり、上記メカニズムと異なるメカニズムによって発明の効果が得られたとしても、本発明の技術的範囲に含まれる。

[0022] 以下、有機半導体素子用インク組成物として、有機発光素子用インク組成物を例に挙げて詳細に説明する。なお、以下の有機発光素子用インク組成物に係る記載を参照し、出願時の技術常識を考慮すれば、当業者であれば、有機電界効果トランジスタおよび有機太陽電池に使用される材料を用いて有機電界効果トランジスタ用インク組成物および有機太陽電池用インク組成物を得ることができる。また、当業者であれば、得られる有機電界効果トランジスタ用インク組成物および有機太陽電池用インク組成物もまた、本発明の効果が得られうることが理解される。

[0023] [第1の有機発光素子材料（第1の有機半導体素子材料）]

有機半導体素子が有機発光素子である場合、第1の半導体素子材料は第1の有機発光素子材料である。

[0024] 第1の有機発光素子材料としては、特に制限されず、有機発光素子を構成する材料であればいずれのものも使用することができる。

[0025] 一実施形態において、有機発光素子用インク組成物は、好ましくは湿式成膜法によって形成された低表面エネルギー層上に適用される。前記低表面エ

ネルギー層としては、正孔注入層、正孔輸送層等が挙げられる。そして、前記正孔注入層上に形成されうる層としては、正孔輸送層および発光層が挙げられる。また、前記正孔輸送層上に形成されうる層としては発光層が挙げられる。したがって、第1の有機発光素子材料は、正孔輸送層に使用される正孔輸送材料、発光層に使用される発光材料であることが好ましい。

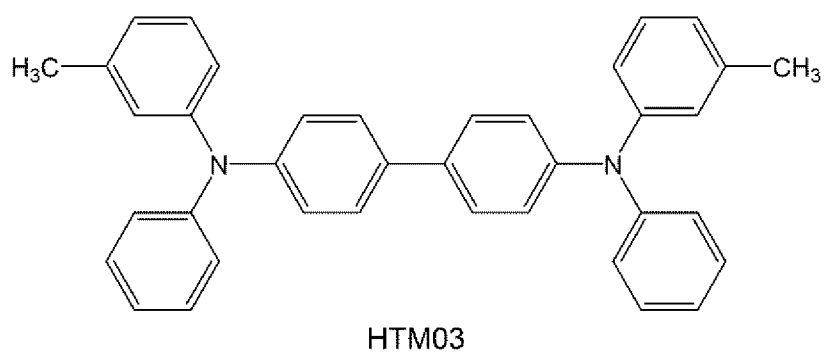
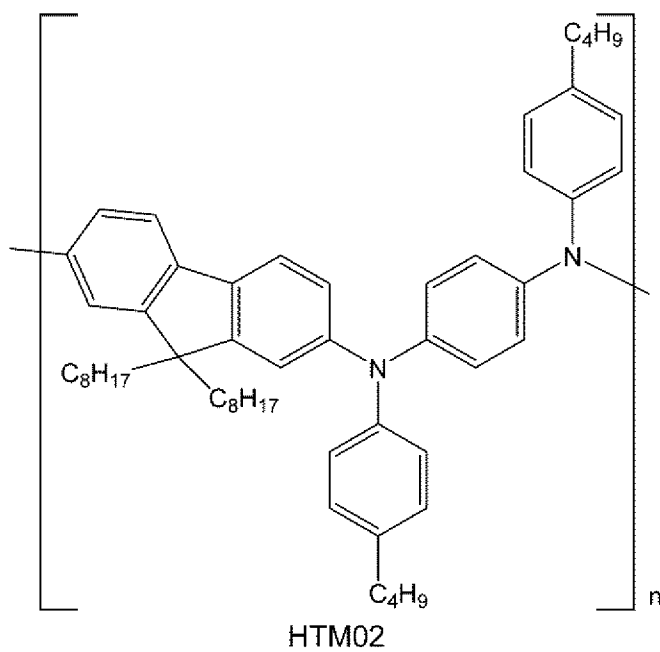
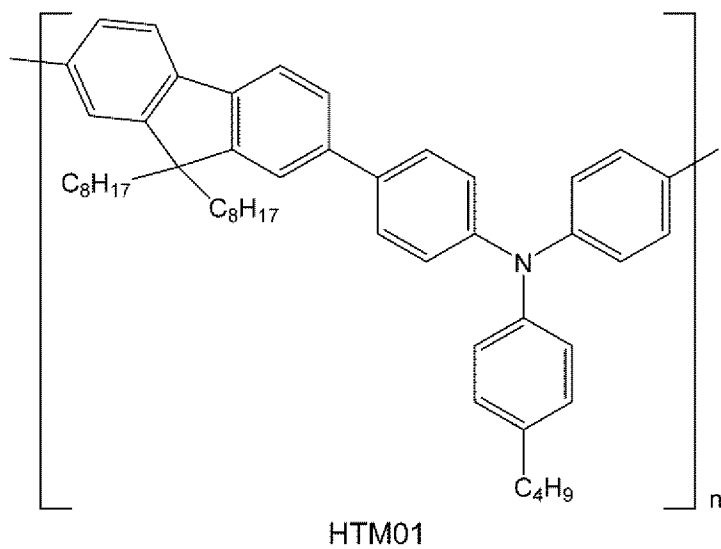
[0026] (正孔輸送材料)

正孔輸送材料は、正孔輸送層において、正孔を効率的に輸送する機能を有する。正孔は、通常、正孔輸送材料から発光層に輸送される。

[0027] 正孔輸送材料としては、特に制限されないが、TPD (N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン (下記化学式HTMO3))、 α -NPD (4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル)、m-MTDATA (4, 4', 4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン)等の低分子トリフェニルアミン誘導体；ポリビニルカルバゾール；下記化学式HTMO1、HTMO2 (nは、1~10000の整数である)で表されるトリフェニルアミン誘導体に置換基を導入して重合した高分子化合物等が挙げられる。これらのうち、正孔輸送材料は、芳香族溶媒に対する溶解性に優れる観点から、トリフェニルアミン誘導体、トリフェニルアミン誘導体に置換基を導入して重合した高分子化合物であることが好ましく、HTMO1、HTMO2、HTMO3であることがより好ましい。

[0028]

[化1]



[0029] 上述の正孔輸送材料は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いて

もよい。

[0030] 正孔輸送材料の含有量は、有機発光素子用インク組成物全量に対して、0.01～10質量%であることが好ましく、0.01～5質量%であることがより好ましい。正孔輸送材料の含有量が0.01質量%以上であると、正孔を効果的に輸送できることから好ましい。一方、正孔輸送材料の含有量が10質量%以下であると、駆動電圧の上昇を抑制できることから好ましい。

[0031] (発光材料)

発光材料は、発光層において、正孔および電子を利用して行う発光に直接または間接に寄与する機能を有する。なお、本明細書において、「発光」には、蛍光による発光および燐光による発光を含むものとする。

[0032] 一実施形態において、発光材料は、ホスト材料およびドーパント材料を含む。

[0033] ホスト材料

ホスト材料は、通常、発光層に注入された正孔および電子を輸送する機能を有する。

[0034] 前記ホスト材料としては、上記機能を有するものであれば特に制限されない。ホスト材料は、高分子ホスト材料および低分子ホスト材料に分類される。なお、本明細書において、「低分子」とは、重量平均分子量(Mw)が5,000以下のものを意味する。一方、本明細書において、「高分子」とは、重量平均分子量(Mw)が5,000超のものを意味する。この際、本明細書において、「重量平均分子量(Mw)」の値は、高速ゲル浸透クロマトグラフィ(GPC)装置(東ソー株式会社製)を用いてポリスチレンを標準物質として測定した値を採用するものとする。

[0035] 高分子ホスト材料としては、特に制限されないが、ポリ(9-ビニルカルbazol)(PVK)、ポリフルオレン(PF)、ポリフェニレンビニレン(PPV)、およびこれらのモノマー単位を含む共重合体等が挙げられる。

[0036] 高分子ホスト材料の重量平均分子量(Mw)は、5,000超5,000

， 000以下であることが好ましく、5，000超1，000，000以下であることがより好ましい。

[0037] 低分子ホスト材料としては、特に制限されないが、4，4′-ビス（9H-カルバゾール-9-イル）ビフェニル（CBP）、ビス（2-メチル-8-キノリノレート）-4-（フェニルフェノラト）アルミニウム（BALq）、1，3-ジカルバゾリルベンゼン（mCP）、4，4′-ビス（9-カルバゾリル）-2，2′-ジメチルビフェニル（CDBP）、N，N′-ジカルバゾリル-1，4-ジメチルベンゼン（DCB）、2，7-ビス（ジフェニルホスフィンオキシド）-9，9-ジメチルフルオレセン（PO6）、3，5-ビス（9-カルバゾリル）テトラフェニルシラン（SimCP）、1，3-ビス（トリフェニルシリル）ベンゼン（UGH3）、1，3，5-トリス〔4-（ジフェニルアミノ）フェニル〕ベンゼン（TDAPB）、9，9′-（p-tert-ブチルフェニル）-1，3-ビスカルバゾール（TBPBCz）、3-（ビフェニル-4-イル）-5-（4-tert-ブチルフェニル）-4-フェニル-4H-1，2，4-トリアゾール（TAZ）、3-（4-（9H-カルバゾール-9-イル）フェニル）-9-（4，6-ジフェニル-1，3，5-トリアジン-2-イル）-9H-カルバゾール（CPCBPTz）、9-（4，6-ジフェニル-1，3，5-トリアジン-2-イル）-9′-フェニル-3，3′-ビスカルバゾール（CzT）等が挙げられる。

[0038] 低分子ホスト材料の重量平均分子量（Mw）は、100～5，000であることが好ましく、300～5，000であることがより好ましい。

[0039] 上述のホスト材料のうち、ホスト材料としては、低分子ホスト材料を用いることが好ましく、4，4′-ビス（9H-カルバゾール-9-イル）ビフェニル（CBP）、ビス（2-メチル-8-キノリノレート）-4-（フェニルフェノラト）アルミニウム（BALq）、9，9′-（p-tert-ブチルフェニル）-1，3-ビスカルバゾール（TBPBCz）、9-（4，6-ジフェニル-1，3，5-トリアジン-2-イル）-9′-フェニル

ー3, 3'-ビスカルバゾール (CzT) を用いることがより好ましく、4, 4'-ビス (9H-カルバゾール-9-イル) ビフェニル (CBP)、9, 9'-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3-ビスカルバゾール (TBPCz)、9-(4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン-2-イル)-9'-フェニル-3, 3'-ビスカルバゾール (CzT) を用いることがさらに好ましい。

[0040] 上述のホスト材料は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0041] ホスト材料の含有量は、有機発光素子用インク組成物全量に対して、0.1~10質量%であることが好ましく、0.1~5質量%であることがより好ましい。ホスト材料の含有量が0.1質量%以上であると、ホスト分子とドーパント分子の分子間距離を短くできることから好ましい。一方、ホスト材料の含有量が10質量%以下であると量子収率の低下を抑制できることから好ましい。

[0042] ドーパント材料

ドーパント材料は、輸送された正孔および電子を再結合することにより得られるエネルギーを利用して発光する機能を有する。

[0043] 前記ドーパント材料としては、上記機能を有するものであれば特に制限されない。ドーパント材料は、通常、高分子ドーパント材料および低分子ドーパント材料に分類される。

[0044] 高分子ドーパント材料としては、特に制限されないが、ポリフェニレンビニレン (PPV)、シアノポリフェニレンビニレン (CN-PPV)、ポリ (フルオレニレンエチニレン) (PFE)、ポリフルオレン (PFO)、ポリチオフェンポリマー、ポリピリジン、およびこれらのモノマー単位を含む共重合体等が挙げられる。

[0045] 高分子ドーパント材料の重量平均分子量 (Mw) は、5,000超5,000,000以下であることが好ましく、5,000超1,000,000以下であることがより好ましい。

- [0046] 低分子ドーパント材料としては、特に制限されないが、蛍光発光材料、燐光発光材料等が挙げられる。
- [0047] 前記蛍光発光材料としては、ナフタレン、ペリレン、ピレン、クリセン、アントラセン、クマリン、p-ビス(2-フェニルエテニル)ベンゼン、キナクリドン、クマリン、Al(C₉H₆NO)₃等のアルミニウム錯体等、ルブレン、ペリミドン、ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチルリル)-4H-ピラン(DCM)、ベンゾピラン、ローダミン、ベンゾチオキサンテン、アザベンゾチオキサンテン、トリフェニルアミンおよびこれらの誘導体等が挙げられる。
- [0048] 前記燐光発光材料としては、周期表第7族～第11族の中心金属と、前記中心金属に配位した芳香族系配位子とを含む錯体が挙げられる。
- [0049] 前記周期表第7族～第11族の中心金属としては、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、オスミウム、イリジウム、金、白金、銀、銅等が挙げられる。これらのうち、中心金属は、イリジウム、白金であることが好ましい。
- [0050] 前記配位子としては、フェニルピリジン、ジフェニルピリジン、p-トリルピリジン、チエニルピリジン、ジフルオロフェニルピリジン、フェニルイソキノリン、フルオレノピリジン、フルオレノキノリン、アセチルアセトン、およびこれらの誘導体等が挙げられる。これらのうち、配位子は、フェニルピリジン、ジフェニルピリジン、p-トリルピリジン、およびこれらの誘導体であることが好ましく、p-トリルピリジンおよびその誘導体であることがより好ましい。
- [0051] 具体的な燐光発光材料としては、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(Ir(ppy)₃)、トリス(2-フェニルピリジン)ルテニウム、トリス(2-フェニルピリジン)パラジウム、ビス(2-フェニルピリジン)白金、トリス(2-フェニルピリジン)オスミウム、トリス(2-フェニルピリジン)レニウム、トリス[2-(p-トリル)ピリジン]イリジウム(Ir(mppy)₃)、トリス[2-(p-トリル)ピリジン]ルテニウム、トリス[2-(p-トリル)ピリジン]パラジウム、トリス[2-(p-トリル)ピリジン]白金、トリス[2-(p-トリル)ピリジン]オスミウム、トリス[2-(p-トリル)ピリジン]レニウム、およびこれらの誘導体等が挙げられる。

リル) ピリジン] 白金、トリス [2- (p-トリル) ピリジン] オスミウム、トリス [2- (p-トリル) ピリジン] レニウム、オクタエチル白金ポルフィリン、オクタフェニル白金ポルフィリン、オクタエチルパラジウムポルフィリン、オクタフェニルパラジウムポルフィリン等が挙げられる。

[0052] 上述のうち、ドーパント材料は、低分子ドーパント材料であることが好ましく、燐光発光材料であることがより好ましく、トリス [2- (p-トリル) ピリジン] イリジウム ($\text{Ir}(\text{mp py})_3$) であることがさらに好ましい。

[0053] 低分子ドーパント材料の重量平均分子量 (M_w) は、100~5,000であることが好ましく、100~3,000であることがより好ましい。

[0054] 上述のドーパント材料は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0055] ドーパント材料の含有量は、有機発光素子用インク組成物全量に対して、0.01~10質量%であることが好ましく、0.01~5質量%であることがより好ましい。ドーパント材料の含有量が0.01質量%以上であると、発光強度を高めることができることから好ましい。一方、ドーパント材料の含有量が10質量%以下であると、量子収率の低下を抑制できることから好ましい。

[0056] 上述のうち、発光材料としては、より高い発光効率が得られうる観点から、低分子発光材料を用いることが好ましく、低分子ホスト材料および低分子ドーパント材料を用いることがより好ましく、トリス [2- (p-トリル) ピリジン] イリジウム ($\text{Ir}(\text{mp py})_3$) および9,9'- (p-tert-ブチルフェニル) -1,3-ビスカルバゾールを用いることがさらに好ましい。

[0057] [レベリング剤]

レベリング剤は、有機発光素子用インク組成物を用いて形成される塗膜表面に配向し、塗膜の乾燥の際に第1の溶媒の優先的な蒸発を抑制または防止する機能を有する。

[0058] また、レベリング剤は、有機発光素子用インク組成物を用いて形成される塗膜表面に配向して、層のうねりを抑制または防止する機能を有する。

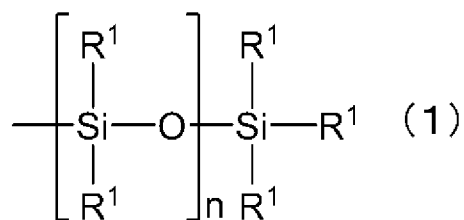
[0059] 本形態に係るレベリング剤は、少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体である。この際、前記レベリング剤は、芳香族含有モノマーを単量体単位としてさらに含んでもよい。また、疎水性モノマーを単量体単位として含んでもよい。さらに、重合開始剤に起因する成分等を含んでもよい。

[0060] (シロキサンモノマー)

シロキサンモノマーは、シロキサン基、重合性官能基、および第1の連結基を含む。この際、前記第1の連結基は、前記シロキサン基と前記重合性官能基とを連結させるものである。なお、本明細書において、「シロキサン」とは、「 $-Si-O-Si-$ 」の構造（シロキサン構造）を意味する。

[0061] シロキサンモノマーが有するシロキサン基としては、特に制限されないが、下記式(1)で表されるものであることが好ましい。

[0062] [化2]



[0063] 上記式(1)において、 R^1 としては、それぞれ独立して、水素原子、 $C_1 \sim C_{30}$ アルキル基、 $C_3 \sim C_{30}$ シクロアルキル基、 $C_1 \sim C_{30}$ アルキルシリルオキシ基が挙げられる。

[0064] 前記 $C_1 \sim C_{30}$ アルキル基としては、特に制限されないがメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、*i* s o oーブチル、*s* e c oーブチル、*t* e r t oーブチル、ペンチル、ヘキシル、デシル、ウンデシル、オクタデシル等が挙げられる。

[0065] また、前記 $C_3 \sim C_{30}$ シクロアルキル基としては、特に制限されないが、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シク

ロヘプチル、トリシクロ [5, 2, 1, 0 (2, 6)] デシル、アダマンチル等が挙げられる。

[0066] 前記C 1～C 30アルキルシリルオキシ基としては、特に制限されないが、メチルシリルオキシ、ジメチルシリルオキシ、トリメチルシリルオキシ、エチルシリルオキシ、ジエチルシリルオキシ、トリエチルシリルオキシ、エチルメチルシリルオキシ、ジエチルメチルシリルオキシ等が挙げられる。

[0067] この際、前記C 1～C 30アルキル基、前記C 3～C 30シクロアルキル基、前記C 1～C 30アルキルシリルオキシ基を構成する水素原子の少なくとも1つは、置換基で置換されていてもよい。当該置換基としては、ハロゲン原子；ヒドロキシ基；チオール基；ニトロ基；スルホ基；メトキシ、エトキシ、プロピル、イソプロピルオキシ、ブトキシ等のC 1～C 10アルコキシ基；メチルアミノ、エチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ等のC 1～C 10アルキルアミノ基；メチルカルボニル、エチルカルボニル、プロピルカルボニル、ブチルカルボニル等のC 2～C 10アルキルカルボニル基；メチルオキシカルボニル、エチルオキシカルボニル、プロピルオキシカルボニル、ブチルオキシカルボニル等のC 2～C 10アルキルオキシカルボニル基が挙げられる。

[0068] これらのうち、R¹は、水素原子、C 1～C 30アルキル基、C 1～C 30アルキルシリルオキシ基を含むことが好ましく、水素原子、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、*i s o*ーブチル、*s e c*ーブチル、*t e r t*ーブチル、トリメチルシリルオキシ、トリエチルシリルオキシを含むことがより好ましく、水素原子、メチル、エチル、プロピル、トリメチルシリルオキシを含むことがさらに好ましい。

[0069] *n*は、1～1000であり、好ましくは1～200である。

[0070] また、シロキサンモノマーが有する重合性官能基としては、特に制限されないが、アクリル、メタクリル、グリシジル、ビニル、ビニリデン等が挙げられる。これらのうち、重合性官能基は、アクリル、メタクリルであることが好ましい。

[0071] さらに、シロキサンモノマーが有する第1の連結基としては、単結合、酸素原子、硫黄原子、C1～C10アルキレン基等が挙げられる。

[0072] 前記C1～C10アルキレン基としては、特に制限されないが、メチレン、エチレン、プロピレン、イソプロピレン、ブチレン、i s oーブチレン、s e cーブチレン、ペンチレン等が挙げられる。

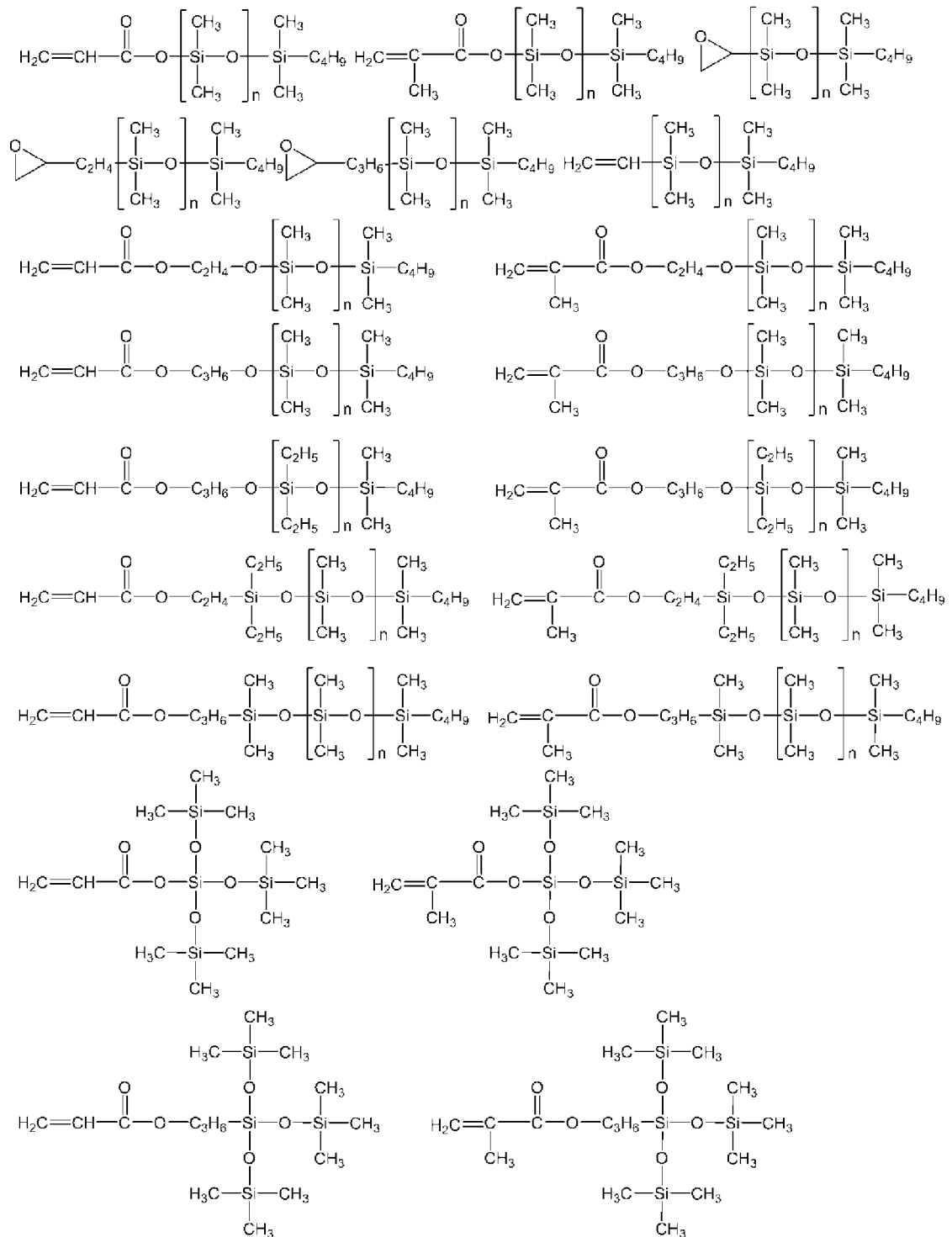
[0073] この際、前記C1～C10アルキレン基を構成する水素原子の少なくとも1つは、上述の置換基で置換されていてもよい。

[0074] 上述のうち、第1の連結基は、単結合、C1～C10アルキレン基であることが好ましく、単結合、メチレン、エチレン、プロピレンであることがより好ましい。

[0075] 具体的なシロキサンモノマーの具体例を以下に示す。

[0076]

[化3]



n は1～1000の整数である。

[0077] 上述のシロキサンモノマーは、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0078] (芳香族含有モノマー)

芳香族含有モノマーは、芳香族溶媒との親和性を向上させる機能を有する。これにより、レベリング剤が好適に溶解しうる。その結果、有機発光素子用インク組成物が塗布しやすくなるとともに、得られる塗膜が平坦性を有しうる。

[0079] 芳香族含有モノマーは、芳香族基、重合性官能基、および第2の連結基を含む。この際、前記第2の連結基は、前記芳香族基と前記重合性官能基とを連結させるものである。

[0080] 前記芳香族基としては、特に制限されないが、C6～C30アリール基である。前記C6～C30のアリール基としては、フェニル、ナフチル、アントラセニル、ビフェニル等が挙げられる。この際、前記C6～C30アリール基を構成する水素原子の少なくとも1つは、C1～C30のアルキル基、C3～C30のシクロアルキル基、上述の置換基で置換されていてもよい。

[0081] また、芳香族含有モノマーが有する重合性官能基は、特に制限されないが、アクリル、メタクリル、グリシジル、ビニル等が挙げられる。これらのうち、重合性官能基は、アクリル、ビニルであることが好ましい。

[0082] さらに、芳香族含有モノマーが有する第2の連結基としては、単結合、酸素原子、硫黄原子、C1～C10アルキレン基が挙げられる。

[0083] 具体的な芳香族含有モノマーとしては、フェニルメタクリレート、ナフチルメタクリレート、ビフェニルメタクリレート、ベンジルメタクリレート、2-エチルフェニルメタクリレート等のアリールメタクリレート；フェニルアクリレート、ナフチルアクリレート、ビフェニルアクリレート、ベンジルアクリレート、2-エチルフェニルアクリレート等のアリールアクリレート；グリシジルフェニルエーテル等のアリールグリシジルエーテル；スチレン、ビニルトルエン、4-ビニルビフェニル、2-ビニルナフタレン等のアリールビニル；フェニルビニルエーテル等のアリールフェニルエーテル；1,1-ジフェニルエチレン等のアリールビニリデン等が挙げられる。

[0084] これらのうち、芳香族溶媒との親和性が高い観点から、アリールビニル、アリールビニリデンを用いることが好ましく、スチレン、1,1-ジフェニ

ルエチレンを用いることがより好ましい。

[0085] 上述の芳香族含有モノマーは単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0086] (疎水性モノマー)

疎水性モノマーは、レベリング剤の性能を調整する機能を有する。

[0087] 疎水性モノマーは、疎水性基、重合性官能基、および第3の連結基を含む。この際、前記第3の連結基は、前記疎水性基と前記重合性官能基とを連結させるものである。なお、疎水性モノマーは芳香族基を含まないため、芳香族含有モノマーには該当しない。また、本明細書において、「疎水性基」とは、疎水性基が水素原子と結合してなる分子の水への溶解度（25℃、25%RH）が100mg/L以下のものを意味する。

[0088] 前記疎水性基としては、特に制限されないが、C1～C30アルキル基、C3～C30シクロアルキル基が挙げられる。

[0089] 前記C1～C30アルキル基およびC3～C30シクロアルキル基は上述と同様である。

[0090] この際、前記C1～C10アルキル基、C3～C30シクロアルキル基を構成する水素原子の少なくとも1つは、疎水性を示す範囲内で、上述の置換基で置換されていてもよい。

[0091] また、疎水性モノマーが有する重合性官能基は、特に制限されないが、アクリル、メタクリル、グリシジル、ビニル等が挙げられる。これらのうち、重合性官能基は、アクリル、メタクリルであることが好ましい。

[0092] さらに、疎水性モノマーが有する第3の連結基としては、単結合、酸素原子、硫黄原子が挙げられる。

[0093] 具体的な疎水性モノマーとしては、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、プロピルメタクリレート、イソプロピルメタクリレート、ブチルメタクリレート、2-エチルヘキシルメタクリレート、ステアシルメタクリレート、2-(ジメチルアミノ)エチルメタクリレート等のアルキルメタクリレート；メチルアクリレート、エチルアクリレート、プロピルアクリレー

ト、イソプロピルアクリレート、ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、ステアリルアクリレート、2-(ジメチルアミノ)エチルアクリレート等のアルキルアクリレート；グリシジルメチルエーテル、エチルグリシジルエーテル、ブチルグリシジルエーテル等のアルキルグリシジルエーテル；ビニルメチルエーテル、エチルビニルエーテル等のアルキルビニルエーテル；シクロペンチルメタクリレート、シクロヘキシルメタクリレート等のシクロアルキルメタクリレート；シクロペンチルアクリレート、シクロヘキシルアクリレート等のシクロアルキルアクリレート；シクロヘキシルグリシジルエーテル等のシクロアルキルグリシジルエーテル；シクロヘキシルビニルエーテル等のシクロアルキルビニルエーテル等が挙げられる。

[0094] なお、上述の疎水性モノマーは単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0095] (重合開始剤)

重合開始剤は、通常、重合体を形成する際に適用される重合反応の開始剤の機能を有する。この際、重合開始剤は、シロキサンモノマーの重合性官能基、芳香族含有モノマーの重合性官能基、疎水性モノマーの重合性官能基等と反応して重合を開始させることができる。この場合には、得られる重合体には、重合開始剤に起因する成分が含まれることがある。

[0096] 重合開始剤としては、特に制限されないが、ラジカル重合開始剤、イオン重合開始剤が挙げられる。

[0097] 前記ラジカル重合開始剤としては、ジ-*t*-ブチルペルオキシド、*t*-ブチルヒドロペルオキシド、*t*-ブチルペルオキシベンゾエート、クメンヒドロペルオキシド、イソブチルペルオキシド、ラウロリルペルオキシド、3,5,5-トリメチルヘキサノイルペルオキシド、*t*-ブチルペルキシピバレート、過酸化ベンゾイル、メチルエチルケトンペルオキシド等の有機過酸化物；2,2'-アゾビスイソブチロニトリル(AIBN)、1,1'-アゾビス(シクロヘキサンカルボニトリル)(ABCN)、2,2'-アゾビス-2-メチルブチロニトリル(AMBN)、2,2'-アゾビス-2,4-

ジメチルバレロニトリル (ADVN)、4, 4'-アゾビス-4-シアノ吉草酸 (ACVA) 等のアゾ化合物等が挙げられる。これらのうち、ラジカル重合開始剤としては、アゾ化合物を用いることが好ましく、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル (AIBN) を用いることがより好ましい。なお、これらのラジカル重合開始剤は単独で用いても、2 種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0098] 前記イオン重合開始剤としては、カチオン重合開始剤およびアニオン重合開始剤が挙げられる。

[0099] カチオン重合開始剤としては、トリフェニルスルホニウムテトラフルオロボレート、トリフェニルスルホニウムヘキサフルオロホスファート、トリフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート等のスルホニウム塩；ビス (p-トルエンスルホニル) ジアゾメタン、ビス (1, 1-ジメチルエチルスルホニル) ジアゾメタン等のビススルホニルジアゾメタン類；p-トルエンスルホン酸-2-ニトロベンジル、p-トルエンスルホン酸-2, 6-ジニトロベンジ等のニトロベンジル誘導体；ピロガロールトリメシラート、ピロガロールトリトシラート、ベンジルトシラート、ベンジルスルホナート等のスルホン酸エステル類；ベンゾイントシラート等のベンゾイントシラート類等が挙げられる。

[0100] また、アニオン重合開始剤としては、有機リチウム化合物が挙げられる。当該有機リチウム化合物としては、特に制限されないが、メチルリチウム、エチルリチウム、プロピルリチウム、ブチルリチウム、sec-ブチルリチウム、iso-ブチルリチウム、tert-ブチルリチウム、ペンチルリチウム、ヘキシルリチウム等のアルキルリチウム；メトキシメチルリチウム、エトキシメチルリチウム等のアルコキシアルキルリチウム；ビニルリチウム、アリルリチウム、プロペニルリチウム、ブテニルリチウム等のアルケニルリチウム；エチニルリチウム、ブチニルリチウム、ペンチニルリチウム、ヘキシニルリチウム等のアルキニルリチウム；ベンジルリチウム、フェニルエチルリチウム、 α -メチルスチリルリチウム等のアラルキルリチウム；フェ

ニルリチウム、ナフチルリチウム等のアリールリチウム；1，1－ジフェニルエチレンリチウム、1，1－ジフェニルヘキシルリチウム、1，1－ジフェニル－3－メチルペントリルリチウム、3－メチル－1，1－ジフェニルペンチルリチウム等のジアリールアルキルリチウム；2－チエニルリチウム、4－ピリジルリチウム、2－キノリルリチウム等のヘテロ環リチウム；トリ（*n*－ブチル）マグネシウムリチウム、トリメチルマグネシウムリチウム等のアルキルリチウムマグネシウム錯体等が挙げられる。

[0101] なお、上述のイオン重合開始剤は単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0102] 上述の重合開始剤のうち、レベリング剤の形態によっても異なるが、ラジカル重合開始剤、アニオン重合開始剤を用いることが好ましく、ラジカル重合開始剤を用いることがより好ましく、過酸化ベンゾイル、*t*－ブチルペルオキシベンゾエート、2，2’－アゾビスイソブチロニトリル（AIBN）を用いることがさらに好ましく、過酸化ベンゾイル、*t*－ブチルペルオキシベンゾエートを用いることが特に好ましい。

[0103] （レベリング剤）

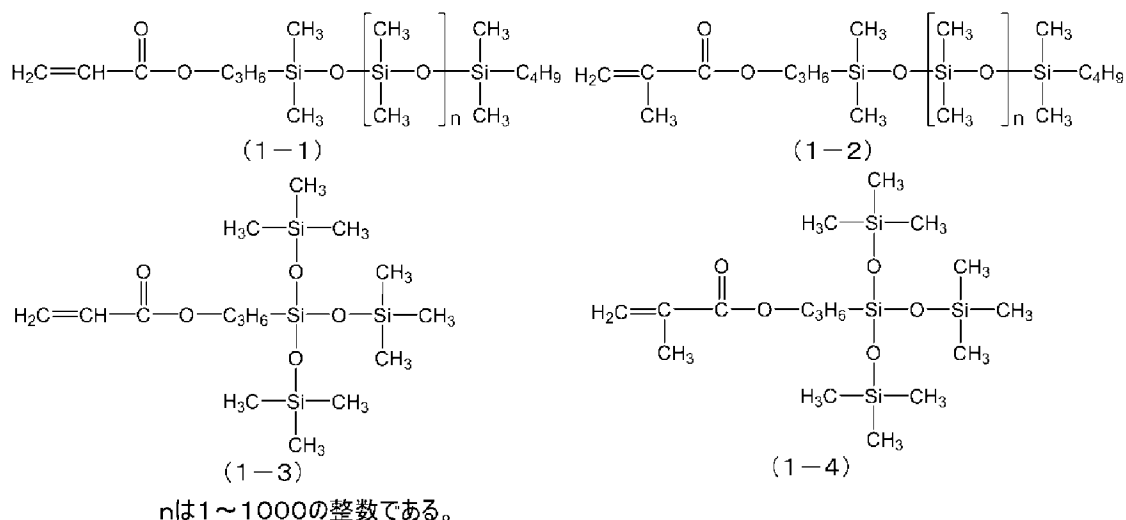
本形態に係るレベリング剤は、少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体である。当該重合体は、単独重合体であっても、共重合体であってもよい。この際、前記共重合体は、ランダム共重合体であっても、交互重合体であっても、グラフト共重合体であっても、ブロック共重合体であってもよい。これらのうち、レベリング剤は、共重合体であることが好ましく、ランダム重合体、ブロック共重合体であることがより好ましく、ブロック共重合体であることがさらに好ましい。レベリング剤がブロック共重合体であると、レベリング剤の機能、具体的には第1の溶媒の優先的な蒸発の抑制または防止効果および／または層のうねりの発生の抑制または防止効果を好適に実現することができる。より詳細には、レベリング剤がブロック共重合体であることにより、ランダム共重合体を使用した場合と比較して、シロキサン構造が部分的に偏在することから、レベリング剤の機能が好適に

発揮される。また、レベリング剤を構成するシロキサン構造と、芳香族含有モノマー由来構造および／または疎水性モノマー由来構造とが偏在すると、シロキサン構造については塗膜表面に配向し、芳香族含有モノマー由来構造および／または疎水性モノマー由来構造については塗膜内部に配向する傾向が高まるため、レベリング剤の機能がより好適に発揮されうる。

[0104] レベリング剤の構造は、その製造方法に基づき決定されうる。この際、前記製造方法は特に制限されず、公知の技術が適宜採用されうる。なお、レベリング剤を製造する際、モノマーの添加量、製造条件（温度、圧力等）を変更することで、得られるレベリング剤の構造・性能を制御することができる。

[0105] レベリング剤の具体的な構造は、上述の通り製造方法により制御されうるが、一実施形態において、下記式（１－１）～（１－４）で表されるシロキサンモノマーの単独重合体、式（１－１）～（１－４）で表されるシロキサンモノマーを２種以上含む共重合体が挙げられる。

[0106] [化4]



[0107] また、別の一実施形態において、レベリング剤の具体的な構造としては、上記シロキサンモノマー（１－１）～（１－４）の少なくとも１つと、芳香族含有モノマーであるスチレン、４－ビニルビフェニル、２－ビニルナフタレンの少なくとも１つと、のランダム共重合体が挙げられる。

[0108] さらに、別の一実施形態において、レベリング剤の具体的な構造としては

、上記シロキサンモノマー（１－１）～（１－４）の少なくとも１つと、芳香族含有モノマーであるスチレン、４－ビニルビフェニル、２－ビニルナフタレンの少なくとも１つと、のブロック共重合体が挙げられる。

[0109] 上述のレベリング剤は、単独で用いても、２種以上を組み合わせ用いてもよい。例えば、ランダム共重合体とブロック共重合体とを混合して使用することができる。

[0110] レベリング剤のケイ素含有率は、１０質量％以上であることが好ましく、１８質量％以上であることがより好ましく、２０～２５質量％であることがさらに好ましい。レベリング剤のケイ素含有率が１０質量％以上であると、表面調整能が高くなり、レベリング剤の機能（第１の溶媒の優先的な蒸発の抑制または防止効果および／または層のうねりの発生の抑制または防止効果）を効果的に発揮しうることから好ましい。なお、レベリング剤のケイ素含有率は、シロキサンモノマーの添加量を適宜調整することで制御することができる。また、本明細書において、「ケイ素含有率」の値は、下記式で計算された値を採用するものとする。

[0111] [数１]

$$\text{ケイ素含有率(質量\%)} = \frac{\text{ケイ素の原子量} \times \text{一分子中のケイ素原子数}}{\text{レベリング剤分子量}} \times 100$$

[0112] レベリング剤の重量平均分子量（Mw）は、５００～１００，０００であることが好ましく、３，０００～４０，０００であることがより好ましい。レベリング剤の重量平均分子量（Mw）が上記範囲にあると、レベリング剤の機能を効果的に発揮することができることから好ましい。

[0113] レベリング剤の不揮発含有量は、第１の有機発光素子材料、レベリング剤、第１の溶媒、および芳香族溶媒の合計を１００質量％とした場合に、０．００１～５．０質量％であることが好ましく、０．００１～１．０質量％であることがより好ましい。レベリング剤の不揮発含有量が０．００１質量％以上であると、レベリング剤の機能を好適に発揮できることから好ましい。一方、レベリング剤の不揮発含有量が５．０質量％以下であると、発光効率

が安定することから好ましい。

[0114] (レベリング剤の製造方法)

レベリング剤は、特に制限されず、公知の方法により製造される。

[0115] 例えば、レベリング剤がブロック共重合体である場合の製造方法として、リビングアニオン重合が挙げられる。

[0116] 具体的なりビングアニオン重合としては、(1) 重合開始剤を用いてシロキサンモノマーをアニオン重合させてポリシロキサンを調製し、次いで、前記ポリシロキサンに芳香族含有モノマー等をアニオン重合させる方法、(2) 重合開始剤を用いて芳香族含有モノマー等をアニオン重合させて芳香族含有ポリマー等を調製し、次いで、前記疎水性ポリマーにシロキサンモノマーをアニオン重合させる方法等が挙げられる。

[0117] なお、重合開始剤の使用量は、所望とするレベリング剤の構造によっても異なるが、モノマー100質量部に対して、0.001～1質量部であることが好ましく、0.005～0.5質量部であることがより好ましく、0.01～0.3質量部であることがさらに好ましい。

[0118] また、重合反応は無溶媒で行っても、溶媒中で行ってもよい。溶媒中で重合を行う際に用いられうる溶媒としては、特に制限されないが、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン等の脂肪族炭化水素溶媒；シクロペンタン、メチルシクロペンタン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン等の脂環族炭化水素溶媒；ベンゼン、キシレン、トルエン、エチルベンゼン等の芳香族炭化水素溶媒；テトラヒドロフラン、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の極性非プロトン性溶媒等が挙げられる。これらの溶媒は単独で用いても、2種以上を混合して用いてもよい。

[0119] 重合反応における溶媒の使用量は、特に制限されないが、モノマーの仕込み量100質量部に対して、0～2000質量部であることが好ましく、10～1000質量部であることがより好ましく、10～100質量部であることがさらに好ましい。

[0120] [第1の溶媒]

第1の溶媒は、有機発光素子用インク組成物の表面張力を低下させる機能を有する。

[0121] 第1の溶媒の表面張力は、 25 mN/m 以下であり、好ましくは 23 mN/m 未満であり、より好ましくは 15 mN/m 以上 23 mN/m 未満である。なお、本明細書において、「表面張力」の値は、プレート法により測定された値を採用するものとする。

[0122] 第1の溶媒としては、表面張力が 25 mN/m 以下であれば特に制限されず、トリフルオロメトキシベンゼン（TFMB）等のフッ素含有芳香族溶媒；ペンタン、ヘキサン、オクタン、ノナン、デカン、ウンデカン、ドデカン、シクロヘキサン等のアルカン系溶媒；ジブチルエーテル、ジオキサン、エチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル系溶媒；メチルエチルケトン（MEK）、メチルイソブチルケトン（MIBK）、ジイソブチルケトン（DIBK）等のケトン系溶媒等が使用されうる。

[0123] これらのうち、フッ素含有芳香族溶媒、アルカン系溶媒、ケトン系溶媒を用いることが好ましく、トリフルオロメトキシベンゼン（TFMB）、デカン、メチルイソブチルケトン（MIBK）を用いることがより好ましい。

[0124] なお、上述の第1の溶媒は単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0125] 第1の溶媒の含有量は、有機発光素子用インク組成物全量に対して、 $5\sim 99$ 質量%であることが好ましく、 $10\sim 90$ 質量%であることがより好ましい。第1の溶媒の含有量が5質量%以上であると、有機発光素子用インク組成物の好適なぬれ性が得られうることから好ましい。一方、第1の溶媒の含有量が99質量%以下であると、第1の有機発光素子材料の析出を抑制または防止できることから好ましい。

[0126] [芳香族溶媒]

芳香族溶媒は、有機発光素子用インク組成物に含有される第1の有機発光素子材料を溶媒させる機能を有する。

[0127] 芳香族溶媒としては、芳香族基を有する溶媒であれば特に制限されず、公

知のものが使用されうる。

- [0128] 芳香族溶媒の具体例としては、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、クメン、ペンチルベンゼン（アミルベンゼン）、ヘキシルベンゼン、シクロヘキシルベンゼン、ドデシルベンゼン、メシチレン、ジフェニルメタン、ジメトキシベンゼン、フェネトール、メトキシトルエン、アニソール、メチルアニソール、ジメチルアニソール等の単環式芳香族溶媒；シクロヘキシルベンゼン、テトラリン、ナフタレン、メチルナフタレン等の縮合環式芳香族溶媒；メチルフェニルエーテル、エチルフェニルエーテル、プロピルフェニルエーテル、ブチルフェニルエーテル等のエーテル系芳香族溶媒；酢酸フェニル、プロピオン酸フェニル、安息香酸エチル、安息香酸プロピル、安息香酸ブチル等のエステル系芳香族溶媒等が挙げられる。
- [0129] これらのうち、単環式芳香族溶媒、縮合環式芳香族溶媒であることが好ましく、アミルベンゼン、テトラリンであることがより好ましい。
- [0130] 上述の芳香族溶媒は単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。
- [0131] なお、トリフルオロメトキシベンゼン等の表面張力が 25 mN/m 以下の溶媒は、芳香族基を含む溶媒であっても第1の溶媒に該当し、芳香族溶媒には含まれない。すなわち、芳香族溶媒の表面張力は 25 mN/m 超である。
- [0132] また、芳香族溶媒の表面張力の上限値としては、特に制限されないが、 36 mN/m 未満であることが好ましく、 35 mN/m 未満であることがより好ましく、 32 mN/m 以下であることがさらに好ましく、 30 mN/m 以下であることが特に好ましく、 28 mN/m 以下であることが最も好ましい。芳香族溶媒の表面張力が 36 mN/m 未満であると、有機発光素子用インク組成物のぬれ性が向上することから好ましい。
- [0133] ここで、溶媒の表面張力の値は、その構造式を適宜変更することで制御することができる。具体的には、溶媒に置換基を導入すると、表面張力が低下する傾向がある。より詳細には、フッ素原子またはフッ素原子を含む官能基、アルキル、アルキルエーテル、シクロアルキルを置換基として導入すると

、この順に表面張力が低下する傾向がある。

[0134] 芳香族溶媒の含有量は、有機発光素子用インク組成物全量に対して、10～90質量%であることが好ましく、30～70質量%であることがより好ましい。芳香族溶媒の含有量が10質量%以上であると、第1の有機発光素子材料の析出を抑制または防止できることから好ましい。一方、芳香族溶媒の含有量が90質量%以下であると、有機発光素子用インク組成物の好適なぬれ性が得られうることから好ましい。

[0135] [第1の溶媒および芳香族溶媒]

一実施形態において、有機発光素子用インク組成物のぬれ性を確保する観点から、第1の溶媒および芳香族溶媒の種類、混合比を調整することが好ましい。

[0136] 具体的には、下記式(1)で表される溶媒表面エネルギーAが30未満であることが好ましく、29未満であることがより好ましく、28未満であることがさらに好ましく、26未満であることが特に好ましい。

[0137] [数2]

$$A = \left(E_1 \times \frac{W_1}{W_1 + W_2} \right) + \left(E_2 \times \frac{W_2}{W_1 + W_2} \right) \quad (1)$$

[0138] 上記式中、 E_1 は、前記第1の溶媒の表面張力であり、 W_1 は、前記第1の溶媒の質量である。また、 E_2 は、前記芳香族溶媒の表面張力であり、 W_2 は、前記芳香族溶媒の質量である。

[0139] なお、第1の溶媒および／または芳香族溶媒が2種以上含まれる場合には、前記式(1)で表される溶媒表面エネルギーAは、これを考慮して算出される。例えば、第1の溶媒が2種含まれる場合には、溶媒表面エネルギーAは式(1)を変形した下記式により算出される。

[0140] [数3]

$$A = \left(E_{1-1} \times \frac{W_{1-1}}{W_{1-1} + W_{1-2} + W_2} \right) + \left(E_{1-2} \times \frac{W_{1-2}}{W_{1-1} + W_{1-2} + W_2} \right) + \left(E_2 \times \frac{W_2}{W_{1-1} + W_{1-2} + W_2} \right)$$

[0141] 上記式中、 E_{1-1} および W_{1-1} は、それぞれ1種類目の第1の溶媒の表面張力および質量であり、 E_{1-2} および W_{1-2} は、それぞれ2種類目の第1の溶媒の表面張力および質量である。

[0142] 溶媒表面エネルギーAは、有機発光素子用インク組成物に含まれる溶媒としての表面張力を考慮したものであり、溶媒表面エネルギーAが小さいほどぬれ性に優れる。

[0143] <有機発光素子用インク組成物の製造方法>

本発明の一実施形態において、有機発光素子用インク組成物の製造方法は、特に制限されないが、(1)レベリング剤および溶媒(第1の溶媒および芳香族溶媒)を含む溶液または分散液を調製し、次いで、当該溶液または分散液に第1の有機発光素子材料を添加する方法、(2)第1の有機発光素子材料および溶媒(第1の溶媒および芳香族溶媒)を含む溶液または分散液を調製し、次いで、当該溶液または分散液にレベリング剤を添加する方法、(3)レベリング剤および溶媒(第1の溶媒および／または芳香族溶媒)を含む溶液または分散液と、第1の有機発光素子材料および溶媒(芳香族溶媒および／または第1の溶媒)を含む溶液または分散液と、をそれぞれ調製し、これらの溶液または分散液を混合する方法等が挙げられる。

[0144] なお、インクジェット記録用に有機発光素子用インク組成物を調製する場合には、その粘度を1～20 mPaとなるように調製することが、十分な吐出性を確保する上で好ましい。

[0145] インクジェット記録用インクを調製する場合には、粗大粒子によるノズル目詰まり等を回避することが好ましい。具体的な方法としては、通常、インク調製の任意の工程において、遠心分離やフィルター濾過により粗大粒子を除去する方法が挙げられる。

[0146] また、インク調製に使用される第1の有機発光素子材料、レベリング剤、第1の溶媒、および芳香族溶媒等は、不純物やイオン成分を含有しない高純度品を用いることが好ましい。これにより、インクジェット記録を連続して行った場合に生じうるノズル上での堆積物の生成に基づくノズル目詰まりを

防止することができる。また、有機発光素子の性能、信頼性等が得られうる。

[0147] 上記で調製されるインクジェット記録用インクは、公知慣用のインクジェット記録方式のプリンター、例えば、ピエゾ方式、サーマル（バブルジェット）方式等の各種オンデマンド方式のプリンターに採用されうる。

[0148] <有機半導体素子>

本発明の一実施形態によれば、有機半導体素子が提供される。この際、前記有機半導体素子は、第2の有機半導体素子材料を含む第2の層と、第1の有機半導体素子材料およびレベリング剤を含み、前記第2の層の直上に配置される第1の層と、を有する。この際、第2の層の表面エネルギーが 28 mN/m 以下である。また、前記レベリング剤が、少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体である。

[0149] 以下、有機半導体素子として、有機発光素子を例に挙げて詳細に説明する。なお、有機発光素子に係る記載を参照し、出願時の技術常識を考慮すれば、当業者であれば、所望の有機電界効果トランジスタおよび有機太陽電池を得ることができる。また、得られる有機電界効果トランジスタおよび有機太陽電池もまた、本発明の効果が得られうるということが理解される。

[0150] 一実施形態において、有機発光素子は、少なくとも陽極、発光層、および陰極を含む。この際、前記有機発光素子は、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、および電子注入層等の他の層を1以上含んでもよい。また、封止部材等の公知のものを含んでもよい。

[0151] [第2の層]

第2の層の表面エネルギーは 28 mN/m 以下であり、好ましくは $18\sim 25\text{ mN/m}$ であり、より好ましくは $18\sim 23\text{ mN/m}$ である。

[0152] 第2の層は、表面エネルギーが 28 mN/m 以下であれば特に制限されないが、通常、湿式成膜法により形成される層である。第2の層の形成方法としては、例えば、有機発光素子用インク組成物（以下、「第2の層形成用インク組成物」とも称することがある）を塗布、乾燥する方法が挙げられる。

[0153] (第2の層形成用インク組成物)

第2の層形成用インク組成物は、通常、第2の有機発光素子材料、レベリング剤（以下、「第2の層形成用レベリング剤」とも称することがある）、および第2の溶媒を含む。

[0154] 第2の有機発光素子材料

第2の層は、その直上に湿式成膜法により第1の層が形成されうることから、通常、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層であり、好ましくは正孔注入層、正孔輸送層である。したがって、第2の有機発光素子材料は、好ましくは、正孔注入層に使用される正孔注入料、正孔輸送層に使用される正孔輸送材料である。

[0155] 正孔注入材料

正孔注入材料は、正孔注入層において、陽極から正孔を取り入れる機能を有する。この際、正孔注入材料が取り入れた正孔は、正孔輸送層または発光層に輸送される。

[0156] 正孔注入材料としては、特に制限されないが、銅フタロシアニン等のフタロシアニン化合物；4，4'，4"-トリス〔フェニル（m-トリル）アミノ〕トリフェニルアミン等のトリフェニルアミン誘導体；1，4，5，8，9，12-ヘキサアザトリフェニレンヘキサカルボニトリル、2，3，5，6-テトラフルオロ-7，7，8，8-テトラシアノーキノジメタン等のシアノ化合物；酸化バナジウム、酸化モリブデン等の酸化物；アモルファスカーボン；ポリアニリン（エメラルディン）、ポリ（3，4-エチレンジオキシチオフェン）-ポリ（スチレンスルホン酸）（PEDOT-PSS）、ポリピロール等の高分子が挙げられる。これらのうち、正孔注入材料は、高分子であることが好ましく、PEDOT-PSSであることがより好ましい。

[0157] 上述の正孔注入材料は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0158] 正孔輸送材料

正孔輸送材料としては、上述したものが用いられうることからここでは説

明を省略する。

[0159] 第2の層形成用レベリング剤

第2の層は、レベリング剤を含んでいてもよい。

[0160] 前記レベリング剤としては、特に制限されないが、上述の少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体であってもよいし、他のレベリング剤であってもよい。

[0161] 前記他のレベリング剤としては、特に制限されないが、ジメチルシリコーン、メチルシリコーン、フェニルシリコーン、メチルフェニルシリコーン、アルキル変性シリコーン、アルコキシ変性シリコーン、アラルキル変性シリコーン、ポリエーテル変性シリコーン等のシリコーン系化合物；ポリテトラフルオロエチレン、ポリビニリデンフルオライド、フルオロアルキルメタクリレート、パーフルオロポリエーテル、パーフルオロアルキルエチレンオキシド等のフッ素系化合物等が挙げられる。

[0162] これらのレベリング剤は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0163] 第2の溶媒

第2の溶媒は、特に制限されず、形成する層に応じて適宜公知のものが使用されうる。具体的には、芳香族系溶媒、アルカン系溶媒、エーテル系溶媒、アルコール系溶媒、エステル系溶媒、アミド系溶媒、他の溶媒等が挙げられる。

[0164] 前記芳香族系溶媒としては、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、クメン、ペンチルベンゼン、ヘキシルベンゼン、シクロヘキシルベンゼン、ドデシルベンゼン、メシチレン、ジフェニルメタン、ジメトキシベンゼン、フェネトール、メトキシトルエン、アニソール、メチルアニソール、ジメチルアニソール等の単環式芳香族溶媒；シクロヘキシルベンゼン、テトラリン、ナフタレン、メチルナフタレン等の縮合環式芳香族溶媒；メチルフェニルエーテル、エチルフェニルエーテル、プロピルフェニルエーテル、ブチルフェニルエーテル等のエーテル系芳香族溶媒；酢酸フェニル、プロピオン酸フェニ

ル、安息香酸エチル、安息香酸プロピル、安息香酸ブチル等のエステル系芳香族溶媒等が挙げられる。

[0165] 前記アルカン系溶媒としては、ペンタン、ヘキサン、オクタン、シクロヘキサン等が挙げられる。

[0166] 前記エーテル系溶媒としては、ジオキサン、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールー１ーモノメチルエーテルアセタート、テトラヒドロフラン等が挙げられる。

[0167] 前記アルコール系溶媒としては、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール等が挙げられる。

[0168] 前記エステル系溶媒としては、酢酸エチル、酢酸ブチル、乳酸エチル、乳酸ブチル等が挙げられる。

[0169] 前記アミド系溶媒としては、N，Nージメチルホルムアミド、N，Nージメチルアセトアミド、2ーピロリドン等が挙げられる。

[0170] 前記他の溶媒としては、水、ジメチルスルホキシド、アセトン、クロロホルム、塩化メチレン等が挙げられる。

[0171] これらのうち、溶媒としては、芳香族系溶媒を含むことが好ましく、縮合環式芳香族溶媒、エーテル系芳香族溶媒、およびエステル系芳香族溶媒からなる群から選択される少なくとも１つを含むことがより好ましく、縮合環式芳香族溶媒および／またはエーテル系芳香族溶媒を用いることがさらに好ましい。

[0172] 上述の溶媒は単独で用いても、２種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0173] なお、第２の層形成用インク組成物は、本発明に係る有機発光素子用インク組成物と同様の組成となることがある。

[0174] （第２の層の形成方法）

第２の層の形成方法は、特に制限されないが、上述の第２の層形成用インク組成物を塗布、乾燥する方法が挙げられる。この際、塗布、乾燥条件等は特に制限されず、公知の技術が適宜採用されうる。

[0175] (第2の層の構成)

第2の層は、第2の有機発光素子材料を含む。

[0176] また、第2の層は、好ましくは第2の層形成用レベリング剤をさらに含む。これにより、第2の層は平坦性に優れる層となるとともに、その表面エネルギーは低いもの（ 28 mN/m 以下）となりうる。

[0177] [第1の層]

第1の層は、第2の層の直上に配置される。

[0178] 第2の層が、好ましくは正孔注入層、正孔輸送層であることから、第1の層は好ましくは正孔輸送層、発光層である。

[0179] 第1の層は、低表面エネルギーである第2の層上に形成されるため、本発明に係る有機発光素子用インク組成物により形成される。よって、第1の層は、有機発光素子材料およびレベリング剤を含む。この際、前記レベリング剤は、少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体である。

[0180] これにより、低表面エネルギー層（第2の層）上であっても好適に膜を形成することができる。

[0181] なお、第1の層の形成方法については、特に制限されず、公知の技術が適宜採用されうる。

[0182] 上述の通り、第2の層は、低表面エネルギー層であり、第1の層は前記第2の層上に本発明に係る有機発光素子用インク組成物を用いて形成される層である。第2の層－第1の層の組み合わせとしては、好ましくは、正孔注入層－正孔輸送層、正孔注入層－発光層、正孔輸送層－発光層である。なお、正孔注入層－正孔輸送層－発光層の構成を有する有機発光素子の場合において、正孔輸送層および発光層が本発明に係る有機発光素子用インク組成物により形成される場合には、正孔輸送層は、正孔注入層（第2の層）に対して第1の層であると同時に、発光層（第1の層）に対して第2の層であるといことができる。

[0183] 第1の層、第2の層、および有機発光素子を構成する他の層の詳細な構成

について、以下詳細に説明する。

[0184] [陽極]

陽極としては、特に制限されないが、金（Au）等の金属、ヨウ化銅（CuI）、インジウムスズ酸化物（ITO）、酸化スズ（SnO₂）、酸化亜鉛（ZnO）等が用いられうる。これらの材料は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0185] 陽極の膜厚としては、特に制限されないが、10～1000nmであることが好ましく、10～200nmであることがより好ましい。

[0186] 陽極は、蒸着やスパッタリング等の方法により形成されうる。この際、フォトリソグラフィー法やマスクを用いた方法によりパターン形成を行ってもよい。

[0187] [正孔注入層]

正孔注入層は、有機発光素子において任意の構成要素であり、陽極から正孔を取り入れる機能を有する。通常、陽極から取り入れた正孔は、正孔輸送層または発光層に輸送される。

[0188] 正孔注入層に用いられうる材料は、上述したものと同様のものが用いられうることからここでは説明を省略する。

[0189] 正孔注入層の膜厚としては、特に制限されないが、0.1nm～5μmであることが好ましい。

[0190] 正孔注入層は、単層であっても、2以上が積層されたものであってもよい。

[0191] 正孔注入層は、湿式成膜法および乾式成膜法により形成することができる。

[0192] 正孔注入層を湿式成膜法で形成する場合には、通常、本発明に係る有機発光素子用インク組成物または第2の層形成用インク組成物を塗布し、得られた塗膜を乾燥する工程を含む。この際、塗布の方式としては、特に制限されないが、インクジェット印刷法、凸版印刷法、グラビア印刷法、スクリーン印刷法、ノズルプリント印刷法等が挙げられる。

[0193] また、正孔注入層を乾式成膜法で形成する場合には、真空蒸着法、スピンコート法等が適用されうる。

[0194] [正孔輸送層]

正孔輸送層は、有機発光素子において任意の構成要素であり、正孔を効率的に輸送する機能を有する。また、正孔輸送層は、正孔の輸送を防止する機能を有しうる。正孔輸送層は、通常、陽極または正孔注入層から正孔を取り入れ、発光層に正孔を輸送する。

[0195] 正孔輸送層に用いられうる材料は、上述したものと同様のものが用いられうることからここでは説明を省略する。

[0196] 正孔輸送層の膜厚としては、特に制限されないが、1 nm～5 μmであることが好ましく、5 nm～1 μmであることがより好ましく、10～500 nmであることがさらに好ましい。

[0197] 正孔輸送層は、単層であっても、2以上が積層されたものであってもよい。

[0198] 正孔輸送層は、湿式成膜法および乾式成膜法により形成することができる。

[0199] 正孔輸送層を湿式成膜法で形成する場合には、通常、本発明に係る有機発光素子用インク組成物または第2の層形成用インク組成物を塗布し、得られた塗膜を乾燥する工程を含む。この際、塗布の方式としては、特に制限されないが、インクジェット印刷法、凸版印刷法、グラビア印刷法、スクリーン印刷法、ノズルプリント印刷法等が挙げられる。

[0200] また、正孔輸送層を乾式成膜法で形成する場合には、真空蒸着法、スピンコート法等が適用されうる。

[0201] [発光層]

発光層は、発光層に注入された正孔および電子の再結合により生じるエネルギーを利用して発光を生じさせる機能を有する。

[0202] 発光層に用いられうる材料は、上述したものと同様のものが用いられうることからここでは説明を省略する。

[0203] 発光層の膜厚としては、特に制限されないが、2～100nmであることが好ましく、2～20nmであることがより好ましい。

[0204] 発光層は湿式成膜法および乾式成膜法により形成することができる。

[0205] 発光層を湿式成膜法で形成する場合には、通常、本発明に係る有機発光素子用インク組成物または第2の層形成用インク組成物を塗布し、得られた塗膜を乾燥する工程を含む。この際、塗布の方式としては、特に制限されないが、インクジェット印刷法、凸版印刷法、グラビア印刷法、スクリーン印刷法、ノズルプリント印刷法等が挙げられる。

[0206] また、発光層を乾式成膜法で形成する場合には、真空蒸着法、スピンコート法等が適用されうる。

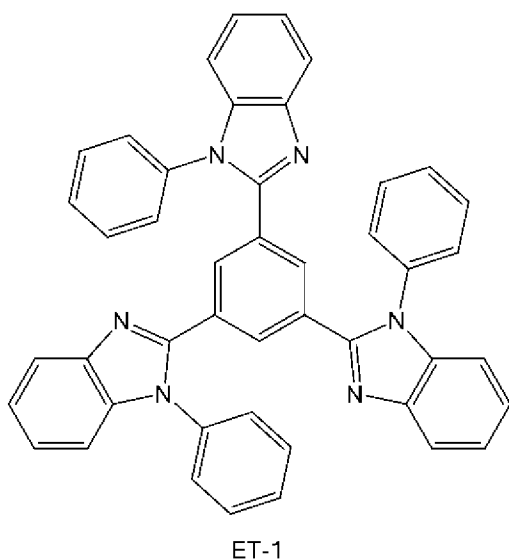
[0207] [電子輸送層]

電子輸送層は、有機発光素子において任意の構成要素であり、電子を効率的に輸送する機能を有する。また、電子輸送層は、電子の輸送を防止する機能を有しうる。電子輸送層は、通常、陰極または電子注入層から電子を取り入れ、発光層に電子を輸送する。

[0208] 電子輸送層に用いられうる材料としては、特に制限されないが、トリス(8-キノリラート)アルミニウム(AIq)、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム(AImq3)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)ベリリウム(BeBq2)、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(p-フェニルフェノラート)アルミニウム(BAIq)、ビス(8-キノリノラート)亜鉛(Znq)等のキノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体；ビス[2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンズオキサゾラート]亜鉛(Zn(BOX)2)等のベンズオキサゾリン骨格を有する金属錯体；ビス[2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾラート]亜鉛(Zn(BTZ)2)ベンゾチアゾリン骨格を有する金属錯体；2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBD)、3-(4-ビフェニリル)-4-フェニル-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,2,4-

トリアゾール（TAZ）、1, 3-ビス [5-（p-tert-ブチルフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル] ベンゼン（OXD-7）、9- [4-（5-フェニル-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル）フェニル] カルバゾール（CO11）、2, 2', 2''-（1, 3, 5-ベンゼントリイル）トリス（1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール）（TPBI）、2- [3-（ジベンゾチオフェン-4-イル）フェニル]-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール（mDBTBI-m-11）等のポリアゾール誘導体；下記化学式ET-1で表されるベンゾイミダゾール誘導体；キノリン誘導体；ペリレン誘導体；ピリジン誘導体；ピリミジン誘導体；キノキサリン誘導体；ジフェニルキノン誘導体；ニトロ置換フルオレン誘導体等が挙げられる。

[0209] [化5]



[0210] 上述の電子輸送材料は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0211] 電子輸送層の膜厚としては、特に制限されないが、5 nm～5 μmであることが好ましく、5～200 nmであることがより好ましい。

[0212] 電子輸送層は、単層であっても、2以上が積層されたものであってもよい。

[0213] 電子輸送層は、通常、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、LB法等により形成することができる。

[0214] [電子注入層]

電子注入層は、有機発光素子において任意の構成要素であり、陰極から電子を取り入れる機能を有する。通常、陰極から取り入れた電子は、電子輸送層または発光層に輸送される。

[0215] 電子注入層に用いられうる材料としては、特に制限されないが、ストロンチウム、アルミニウム等の金属バッファ層；フッ化リチウム等のアルカリ金属化合物バッファ層；フッ化マグネシウム等のアルカリ土類金属化合物バッファ層；酸化アルミニウム等の酸化物バッファ層等が挙げられる。これらの材料は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0216] 電子注入層の膜厚としては、特に制限されないが、0.1 nm～5 μmであることが好ましい。

[0217] 電子注入層は、単層であっても、2以上が積層されたものであってもよい。

[0218] 電子注入層は、通常、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、LB法等により形成することができる。

[0219] [陰極]

陰極としては、特に制限されないが、リチウム、ナトリウム、マグネシウム、アルミニウム、ナトリウム－カリウム合金、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、希土類金属等が挙げられる。これらの材料は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0220] 陰極は、通常、蒸着やスパッタリング等の方法により形成されうる。

[0221] 陰極の膜厚としては、特に制限されないが、10～1000 nmであることが好ましく、10～200 nmであることがより好ましい。

実施例

[0222] 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」の表示を用いるが、特

に断りがない限り「質量部」を表す。

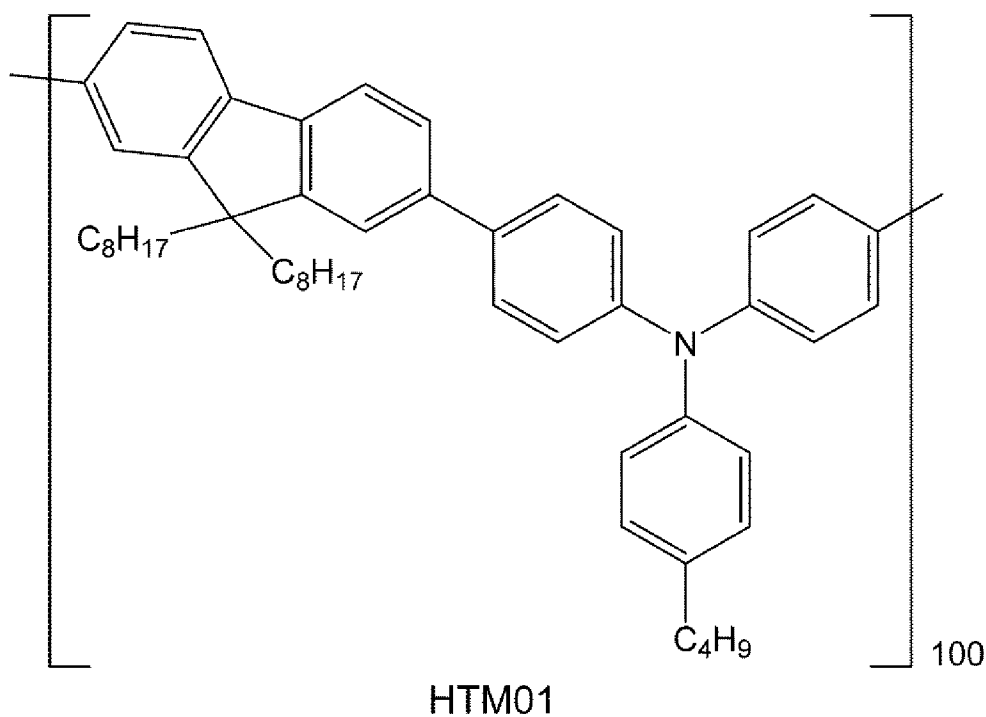
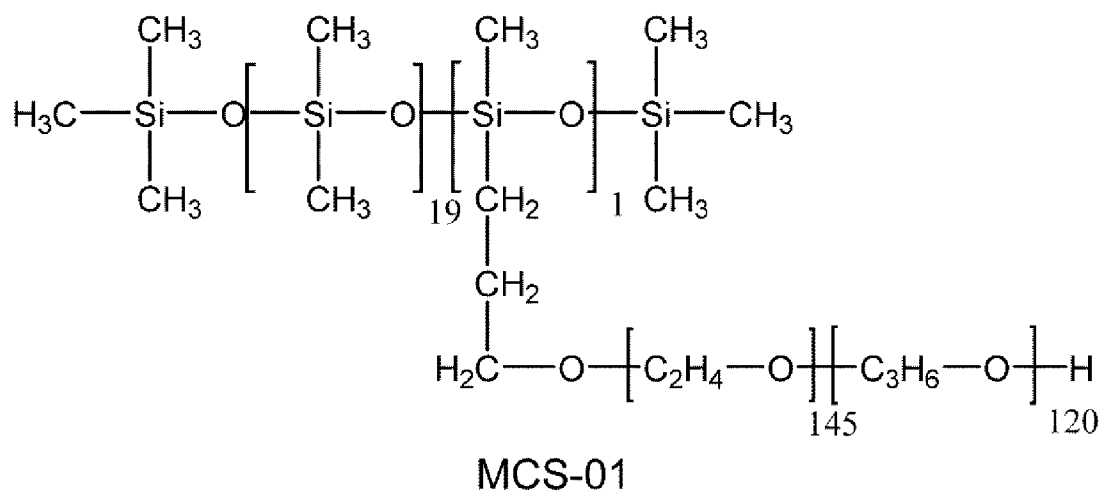
[0223] [実施例 1]

下記式で表されるレベリング剤 MCS-01（ポリエーテル変性シリコンオイル、ランダム重合体）0.005部と、第1の溶媒であるトリフルオロメトキシベンゼン（TFMB、表面張力：22 mN/M）50部と、芳香族溶媒であるテトラリン（表面張力：35 mN/M）50部と、を混合して、混合液を調製した。なお、MCS-01は白金触媒存在下、メチルヒドロジェンシリコンオイルとアルケニル化合物を反応させることで合成した。

[0224] 前記混合液に、下記式で表される正孔輸送材料である HTM-01（繰返し単位数：100、ADS社製）0.01部を投入し、加熱溶解した。室温まで冷却し、0.45 μmのフィルターであるマイシヨリディスク（東ソー株式会社製）を用いて異物を除去することで、有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0225]

[化6]



[0226] なお、下記式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、28.5である。

[0227] [数4]

$$\mathbf{A} = \left(\mathbf{E}_1 \times \frac{w_1}{w_1 + w_2} \right) + \left(\mathbf{E}_2 \times \frac{w_2}{w_1 + w_2} \right) \quad (1)$$

[0228] また、レベリング剤のケイ素含有率は、4.1質量%であった。この際、

レベリング剤のケイ素含有率は、以下の方法により測定した。すなわち、 ^1H -NMRによりポリエーテル変性部とジメチルシロキサン部のモル比を求め、質量%を算出した。

[0229] [実施例 2 ～ 10]

第1の溶媒を、それぞれオクタン（表面張力：21 mN/M）、ノナン（表面張力：22 mN/M）、デカン（表面張力：23 mN/M）、ウンデカン（表面張力：24 mN/M）、ドデカン（表面張力：25 mN/M）、メチルエチルケトン（MEK、表面張力：24.6 mN/M）、メチルイソブチルケトン（MIBK、表面張力：23.6 mN/M）、ジイソブチルケトン（DIBK、表面張力：23.9 mN/M）、およびジブチルエーテル（表面張力：22.4 mN/M）に変更したことを除いては、実施例1と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

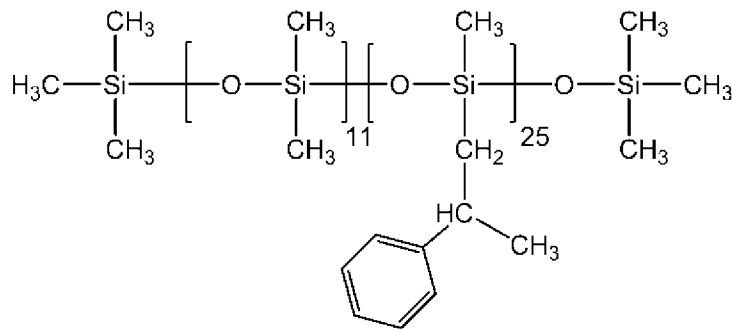
[0230] なお、式（1）で表される溶媒表面エネルギーAは、オクタンを用いた場合（実施例2）は28であり、ノナンを用いた場合（実施例3）は28.5であり、デカンを用いた場合（実施例4）は29であり、ウンデカンを用いた場合（実施例5）は29.5であり、ドデカンを用いた場合（実施例6）は30であり、メチルエチルケトンを用いた場合（実施例7）は29.8であり、メチルイソブチルケトンを用いた場合（実施例8）は29.3であり、ジイソブチルケトンを用いた場合（実施例9）は29.5であり、およびジブチルエーテルを用いた場合（実施例10）は28.7である。

[0231] [実施例 11]

レベリング剤を、下記式で表されるレベリング剤MCS-02（アラルキル変性シリコンオイル、ランダム重合体、芳香族含有モノマーを含むに変更したことを除いては、実施例1と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。なお、MCS-02は使用するモノマーを変更したことを除いては、実施例1と同様の方法で合成した。

[0232]

[化7]



MCS-02

[0233] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、28.5である。

[0234] また、レベリング剤のケイ素含有率を、実施例1と同様の方法で測定したところ、19.3質量%であった。

[0235] [実施例12および13]

溶媒を、それぞれデカン（表面張力：23mN/M）およびメチルイソブチルケトン（MIBK、表面張力：23.6mN/M）に変更したことを除いては、実施例11と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

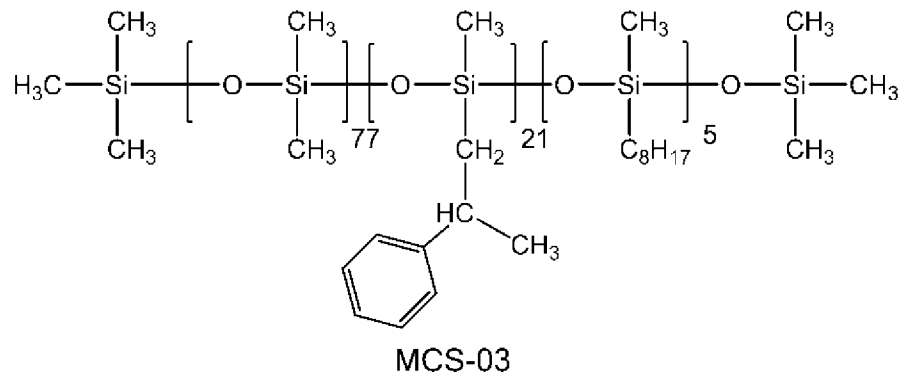
[0236] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、デカンを用いた場合（実施例12）は29であり、メチルイソブチルケトンを用いた場合（実施例13）は29.3である。

[0237] [実施例14]

レベリング剤を、MCS-01と同様に合成した下記式で表されるレベリング剤MCS-03（アラルキル変性シリコーンオイル、ランダム重合体、芳香族含有モノマーを含む）に変更したことを除いては、実施例1と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0238]

[化8]



[0239] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、28.5である。

[0240] また、レベリング剤のケイ素含有率を、実施例1と同様の方法で測定したところ、21.1質量%であった。

[0241] [実施例15および16]

溶媒を、それぞれデカン（表面張力：23mN/M）およびメチルイソブチルケトン（MIBK、表面張力：23.6mN/M）に変更したことを除いては、実施例14と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

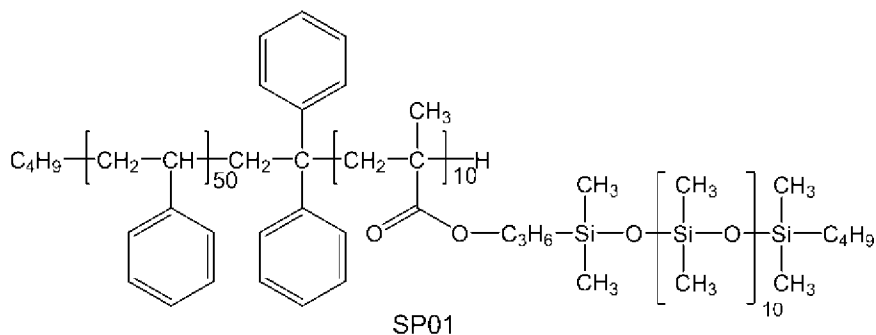
[0242] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、デカンを用いた場合（実施例15）は29であり、メチルイソブチルケトンを用いた場合（実施例16）は29.3である。

[0243] [実施例17]

レベリング剤を、下記式で表されるSP01（ブロック重合体、芳香族含有モノマーを含む）に変更したことを除いては、実施例1と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。SP01はシリコンマクロマーFM0711（JNC株式会社）とスチレンを用い、n-ブチルリチウムによるリビングアニオン重合により合成した。

[0244]

[化9]



[0245] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、28.5である。

[0246] また、レベリング剤のケイ素含有率を、実施例1と同様の方法で測定したところ、20.0質量%であった。

[0247] [実施例18～20]

第1の溶媒を、それぞれデカン（表面張力：23mN/M）、メチルイソブチルケトン（MIBK、表面張力：23.6mN/M）、およびジブチルエーテル（表面張力：22.4mN/M）に変更したことを除いては、実施例17と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

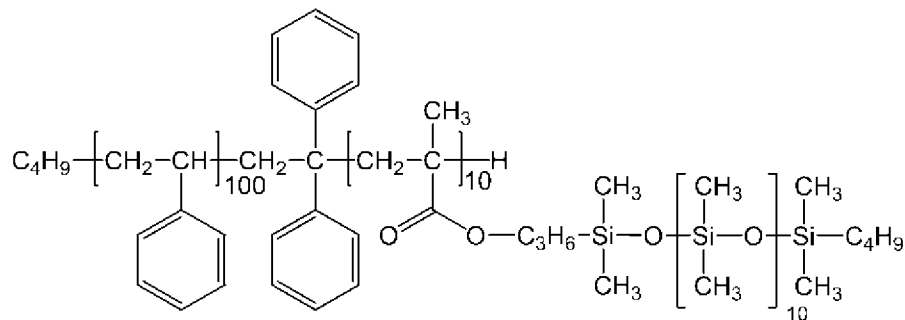
[0248] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、デカンを用いた場合（実施例18）は29であり、メチルイソブチルケトンを用いた場合（実施例19）は29.3であり、ジブチルエーテルを用いた場合（実施例20）は28.7である。

[0249] [実施例21]

レベリング剤を、SP01と同様に合成した下記式で表されるSP02（ブロック重合体、芳香族含有モノマーを含む、）に変更したことを除いては、実施例1と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0250]

[化10]



SP02

[0251] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、28.5である。

[0252] また、レベリング剤のケイ素含有率を、実施例 1 と同様の方法で測定したところ、14.9質量%であった。

[0253] [実施例 22~24]

第1の溶媒を、それぞれデカン（表面張力：23 mN/M）、メチルイソブチルケトン（MIBK、表面張力：23.6 mN/M）、およびジブチルエーテル（表面張力：22.4 mN/M）に変更したことを除いては、実施例21と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

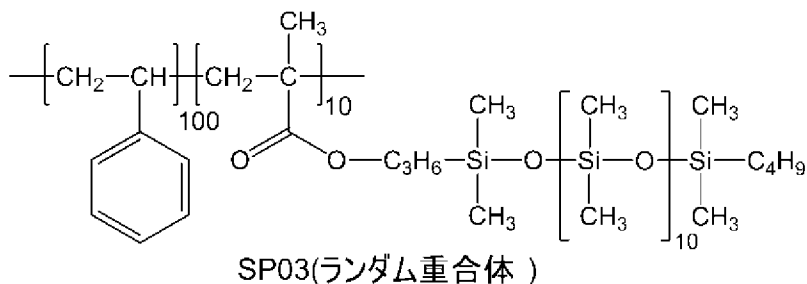
[0254] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーＡは、デカンを用いた場合（実施例２２）は２９であり、メチルイソブチルケトンを用いた場合（実施例２３）は２９．３であり、ジブチルエーテルを用いた場合（実施例２４）は２８．７である。

[0255] [实施例 25]

レベリング剤を、下記式で表されるS P O 3（ランダム重合体、芳香族含有モノマーを含む、）に変更したことを除いては、実施例1と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。なお、S P O 3はシリコンマクロマーF M O 7 1 1（J N C株式会社）とスチレンを用い、t-ブチルペルオキシベンゾエートにより重合、合成した。

[0256]

[化11]



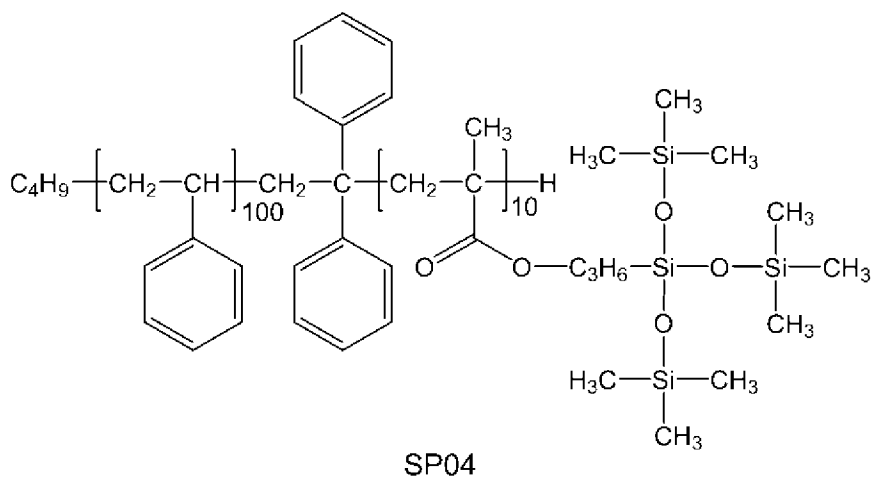
[0257] なお、式(1)で表される溶媒表面エネルギーAは、28.5である。

[0258] また、レベリング剤のケイ素含有率を、実施例1と同様の方法で測定したところ、14.9質量%であった。

[0259] [実施例26]

レベリング剤を、下記式で表されるSP04（ブロック重合体、芳香族含有モノマーを含む、）に変更したことを除いては、実施例1と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。なお、SP04は、使用するモノマーを変更したことを除いては、実施例25のSP03と同様の方法で合成した。

[0260] [化12]



[0261] なお、式(1)で表される溶媒表面エネルギーAは、28.5である。

[0262] また、レベリング剤のケイ素含有率を、実施例1と同様の方法で測定したところ、15.1質量%であった。

[0263] [実施例27]

芳香族溶媒を、アミルベンゼン（表面張力：29 mN/M）に変更したことを除いては、実施例1と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0264] なお、式（1）で表される溶媒表面エネルギーAは、25.5である。

[0265] [実施例28および29]

第1の溶媒を、それぞれウンデカン（表面張力：24 mN/M）およびジイソブチルケトン（DIBK、表面張力：23.9 mN/M）に変更したことを除いては、実施例27と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0266] なお、式（1）で表される溶媒表面エネルギーAは、ウンデカンを用いた場合（実施例28）は26.5であり、ジイソブチルケトンを用いた場合（実施例29）は26.5である。

[0267] [実施例30～35]

芳香族溶媒を、キシレン（表面張力：29 mN/M）、メシチレン（表面張力：28 mN/M）、シクロヘキシルベンゼン（表面張力：34 mN/M）、1-メチルナフタレン（表面張力：39 mN/M）、ブチルフェニルエーテル（表面張力：31 mN/M）、および安息香酸エチル（表面張力：35 mN/M）に変更したことを除いては、実施例8と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0268] なお、式（1）で表される溶媒表面エネルギーAは、キシレンを用いた場合（実施例30）は26.3であり、メシチレンを用いた場合（実施例31）は25.8であり、シクロヘキシルベンゼンを用いた場合（実施例32）は28.8であり、1-メチルナフタレンを用いた場合（実施例33）は31.3であり、ブチルフェニルエーテルを用いた場合（実施例34）は27.3であり、安息香酸エチルを用いた場合（実施例35）は29.3である。

[0269] [実施例36～42]

芳香族溶媒を、アミルベンゼン（表面張力：29 mN/M）、キシレン（

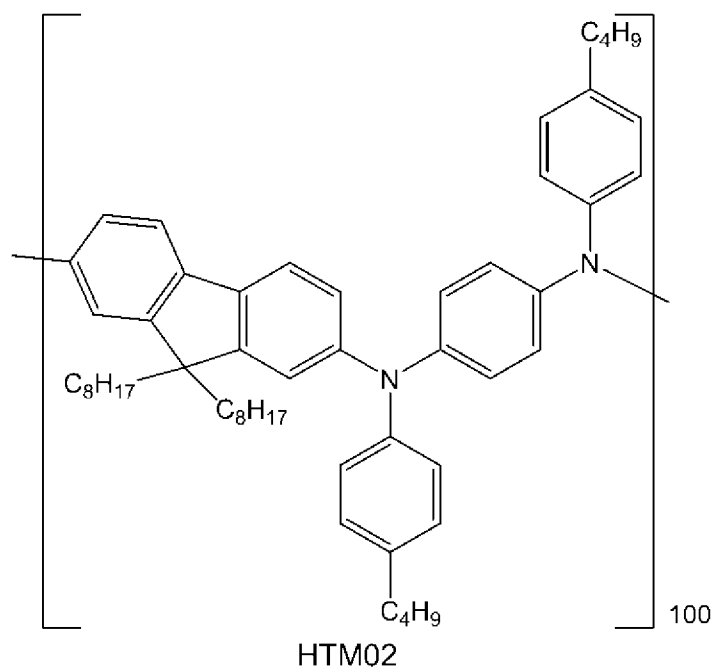
表面張力：29 mN/M)、メシチレン(表面張力：28 mN/M)、シクロヘキシルベンゼン(表面張力：34 mN/M)、1-メチルナフタレン(表面張力：39 mN/M)、ブチルフェニルエーテル(表面張力：31 mN/M)、および安息香酸エチル(表面張力：35 mN/M)に変更したことを除いては、実施例19と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0270] なお、式(1)で表される溶媒表面エネルギーAは、アミルベンゼンを用いた場合(実施例36)は26.3であり、キシレンを用いた場合(実施例37)は26.3であり、メシチレンを用いた場合(実施例38)は25.8であり、シクロヘキシルベンゼンを用いた場合(実施例39)は28.8であり、1-メチルナフタレンを用いた場合(実施例40)は31.3であり、ブチルフェニルエーテルを用いた場合(実施例41)は27.3であり、安息香酸エチルを用いた場合(実施例42)は29.3である。

[0271] [実施例43]

正孔輸送材料を、下記式で表されるHTM02(ADS社製)に変更したことを除いては、実施例17と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0272] [化13]



[0273] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、28.5である。

[0274] [実施例44～46]

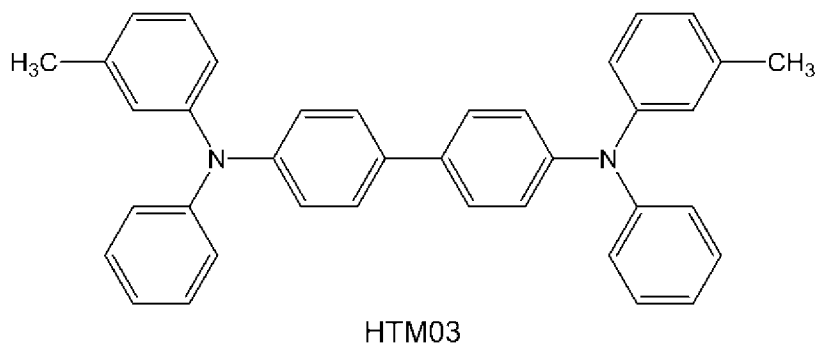
第1の溶媒を、それぞれデカン（表面張力：23mN/M）、メチルイソブチルケトン（MIBK、表面張力：23.6mN/M）、およびジイソブチルケトン（DIBK、表面張力：23.9mN/M）に変更したことを除いては、実施例43と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0275] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、デカンを用いた場合（実施例44）は29であり、メチルイソブチルケトンを用いた場合（実施例45）は29.3であり、ジイソブチルケトンを用いた場合（実施例46）は29.5である。

[0276] [実施例47]

正孔輸送材料を、下記式で表されるHTM03（東京化成工業社製）に変更したことを除いては、実施例17と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0277] [化14]



[0278] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、28.5である。

[0279] [実施例48～50]

第1の溶媒を、それぞれデカン（表面張力：23mN/M）、メチルイソブチルケトン（MIBK、表面張力：23.6mN/M）、およびジイソブチルケトン（DIBK、表面張力：23.9mN/M）に変更したことを除いては、実施例47と同様の方法で有機発光素子用インク組成物を製造した。

。

[0280] なお、式（１）で表される溶媒表面エネルギーAは、デカンを用いた場合（実施例４８）は29であり、メチルイソブチルケトンを用いた場合（実施例４９）は29.3であり、ジイソブチルケトンを用いた場合（実施例５０）は29.5である。

[0281] [比較例１]

レベリング剤であるMCS-01（ポリエーテル変性シリコンオイル、ランダム重合体）0.005部と、芳香族溶媒であるテトラリン（表面張力：35mN/M）100部と、を混合して、混合液を調製した。

[0282] 前記混合液に、正孔輸送材料であるHTM-01（ADS社製）0.01部を投入し、加熱溶解した。室温まで冷却し、0.45μmのフィルターであるマイシヨリディスク（東ソー株式会社製）を用いて異物を除去することで、有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0283] [比較例２]

レベリング剤であるSPO1（ブロック重合体、芳香族含有モノマーを含む、）0.005部と、芳香族溶媒であるテトラリン（表面張力：35mN/M）100部と、を混合して、混合液を調製した。

[0284] 前記混合液に、正孔輸送材料であるHTM-01（ADS社製）0.01部を投入し、加熱溶解した。室温まで冷却し、0.45μmのフィルターであるマイシヨリディスク（東ソー株式会社製）を用いて異物を除去することで、有機発光素子用インク組成物を製造した。

[0285] [性能評価]

実施例１～５０および比較例１～３で製造した有機発光素子用インク組成物を用いた性能評価を行った。

[0286] （接触角評価）

低表面エネルギー膜を作製し、当該低表面エネルギー膜上における有機発光素子用インク組成物の接触角を評価した。

[0287] 低表面エネルギー膜は、以下のように作製した。すなわち、ポリ（３，４

ーエチレンジオキシチオフェン)ーポリ(スチレンスルホン酸)(PEDOT-PSS)であるA14083(Clevios社製)1部と、Nafion(登録商標)(テトラフルオロエチレンおよびパーフルオロ[2-(フルオロスルホニルエトキシ)プロピルビニルエーテル]の共重合体)の10%水分散溶液(aldrich社製)0.5部とを混合した。得られた混合液を、ガラス基板上にスピンコートし、180℃で15分間焼成することで、低エネルギー膜を作製した。

[0288] 低表面エネルギー膜上に、有機発光素子用インク組成物1μLをシリンジにより滴下し、接触角を測定した。得られた結果について、下記基準に準拠して評価を行った。

[0289] × : 30度超
△ : 28度超30度以下
○ : 26度超28度以下
◎ : 26度以下

[0290] (輝度ムラ)
有機発光素子を作製し、得られた有機発光素子についての輝度ムラを測定した。

[0291] 有機発光素子は、以下のように作製した。

[0292] すなわち、まず、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)ーポリ(スチレンスルホン酸)(PEDOT-PSS)であるA14083(Clevios社製)1部と、Nafion(登録商標)(テトラフルオロエチレンおよびパーフルオロ[2-(フルオロスルホニルエトキシ)プロピルビニルエーテル]の共重合体)の10%水分散溶液(aldrich社製)0.5部とを混合し、混合液を調製した。

[0293] 次に、洗浄したITO基板にUV/O₃を照射し、上記調製した混合液をスピンコートにより45nm成膜し、大気中で180℃、15分間加熱することで、正孔注入層を形成した。有機発光素子用インク組成物を、正孔注入層上にスピンコートにより10nm成膜し、窒素雰囲気下にて200℃で3

0分間乾燥させることで、正孔輸送層を形成した。次に、 $5 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ の真空条件下で、発光層としてトリス（8-キノリノラト）アルミニウム（Alq）を60nm、電子注入層としてフッ化リチウムを1.0nm、陰極としてアルミニウムを100nm順次成膜することで、有機発光素子を作製した。

[0294] このように作製した有機発光素子に対し、外部電源に接続して10mA/cm²の電流を流し、有機発光素子からの発光をBM-9（株式会社トプコン製）にて測光した。この際、有機発光素子の輝度の最大値、最小値、および面内平均輝度をそれぞれ測定し、下記式により輝度のバラツキ率を測定した。

[0295] [数5]

$$\text{輝度のバラツキ率}(\%) = \frac{\text{輝度の最大値} - \text{輝度の最小値}}{\text{面内平均輝度}} \times 100$$

[0296] 輝度ムラは以下の基準に従って評価した。

[0297] ×：輝度のバラツキ率が70%超である

△：輝度のバラツキ率が50%超70%以下である

○：輝度のバラツキ率が30%超50%以下である

◎：輝度のバラツキ率が20%超30%以下である

◎◎：輝度のバラツキ率が20%以下である

[0298] 得られた結果を下記表1～5に示す。

[0299]

[表1]

	第1の有機 発光素子材料	レベリング剤			第1の溶媒		芳香族溶媒		評価結果	
		芳香族含有 モノマー	重合形態	ケイ素含有率 (質量%)	種類*	表面張力 (mN/m)	種類	表面張力 (mN/m)	式(1)	接触角 輝度ムラ
実施例1	HTM01	無	ランダム	4.1	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	○ △
実施例2	HTM01	無	ランダム	4.1	オクタン	21	テトラリン	35	28	○ △
実施例3	HTM01	無	ランダム	4.1	ノナン	22	テトラリン	35	28.5	○ △
実施例4	HTM01	無	ランダム	4.1	デカン	23	テトラリン	35	29	△ △
実施例5	HTM01	無	ランダム	4.1	ウンデカン	24	テトラリン	35	29.5	△ △
実施例6	HTM01	無	ランダム	4.1	ドデカン	25	テトラリン	35	30	△ △
実施例7	HTM01	無	ランダム	4.1	MEK	24.6	テトラリン	35	29.8	△ △
実施例8	HTM01	無	ランダム	4.1	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3	△ △
実施例9	HTM01	無	ランダム	4.1	DIBK	23.9	テトラリン	35	29.5	△ △
実施例10	HTM01	無	ランダム	4.1	ジブチルエーテル	22.4	テトラリン	35	28.7	○ △

* TFMB:トリフルオロメチルベンゼン, MEK:メチルエチルケトン, MIBK:メチルイソブチルケトン, DIBK:ジイソブチルケトン

[0300] 表 1 の結果からも明らかなように、実施例 1 ～ 10 は、接触角の値が低く、低表面エネルギー膜上であっても有機発光素子用インク組成物を好適に塗布できることが分かる。

[0301] また、実施例 1 ～ 10 の有機発光素子用インク組成物を用いてなる有機発光素子は、輝度ムラが少ないことが分かる。

[0302] ここで、実施例 1 ～ 3 および 10 と、実施例 4 ～ 9 とを対比すると、実施例 1 ～ 3 および 10 において使用する第 1 の溶媒の表面張力が 23 未満、または式 (1) で表される溶媒表面エネルギー A が 29 未満であると、有機発光素子用インク組成物の接触角の性能がより高いことが分かる。

[0303]

[表2]

	第1の有機 発光素子材料	レベリング剤			第1の溶媒		芳香族溶媒		式(1)	評価結果	
		芳香族含有 モノマー	重合形態	ケイ素含有率 (質量%)	種類	表面張力 (mN/m)	種類	表面張力 (mN/m)		接触角	輝度ムラ
実施例1	HTM01	無	ランダム	4.1	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	○	△
実施例4	HTM01	無	ランダム	4.1	デカン	23	テトラリン	35	29	△	△
実施例8	HTM01	無	ランダム	4.1	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3	△	△
実施例10	HTM01	無	ランダム	4.1	ジブチルエーテル	22.4	テトラリン	35	28.7	○	△
実施例11	HTM01	有	ランダム	19.3	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	○	○
実施例12	HTM01	有	ランダム	19.3	デカン	23	テトラリン	35	29	○	○
実施例13	HTM01	有	ランダム	19.3	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3	○	○
実施例14	HTM01	有	ランダム	21.1	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	○	○
実施例15	HTM01	有	ランダム	21.1	デカン	23	テトラリン	35	29	○	○
実施例16	HTM01	有	ランダム	21.1	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3	○	○
実施例17	HTM01	有	ブロック	20.0	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	◎	◎◎
実施例18	HTM01	有	ブロック	20.0	デカン	23	テトラリン	35	29	◎	◎◎
実施例19	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3	◎	◎◎
実施例20	HTM01	有	ブロック	20.0	ジブチルエーテル	22.4	テトラリン	35	28.7	◎	◎◎
実施例21	HTM01	有	ブロック	14.9	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	◎	◎
実施例22	HTM01	有	ブロック	14.9	デカン	23	テトラリン	35	29	◎	◎
実施例23	HTM01	有	ブロック	14.9	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3	○	◎
実施例24	HTM01	有	ブロック	14.9	ジブチルエーテル	22.4	テトラリン	35	28.7	◎	◎
実施例25	HTM01	有	ランダム	14.9	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	○	○
実施例26	HTM01	有	ブロック	15.1	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	◎	◎

* TFMB:トリフルオロメチルペンゼン, MEK:メチルエチルケトン, MIBK:メチルイソブチルケトン, DIBK:ジイソブチルケトン

[0304] 表2の結果からも明らかなように、実施例11～26は、接触角の値が低く、低表面エネルギー膜上であっても有機発光素子用インク組成物を好適に塗布できることが分かる。また、実施例11～26の有機発光素子用インク組成物を用いてなる有機発光素子は、輝度ムラが少ないことが分かる。

[0305] ここで、実施例1、4、8、および10と、実施例11～16および25とを対比すると、実施例11～16においては使用するレベリング剤が芳香族含有モノマーを単量体単位として含むと、輝度ムラが向上していることが分かる。

[0306] また、実施例11～16および25と、実施例17～24および26とを対比すると、実施例17～24において使用するレベリング剤がブロック共重合体であると、接触角および輝度ムラの性能がよりいっそう高いことが分かる。

[0307] なお、上記実施例17～24および26のうち、特に実施例17～20を参照すると、レベリング剤のケイ素含有率が20質量%以上であると、輝度ムラの性能が顕著に高いことが分かる。

[0308]

[表3]

	第1の有機 発光素子材料	レベリング剤		第1の溶媒		芳香族溶媒		評価結果	
		芳香族含有 モノマー	重合形態	ケイ素含有率 (質量%)	種類	表面張力 (mN/m)	種類	表面張力 (mN/m)	式(1)
実施例1	HTM01	無	ランダム	4.1	TFMB	22	テトラリン	35	28.5
実施例5	HTM01	無	ランダム	4.1	ウンデカン	24	テトラリン	35	29.5
実施例8	HTM01	無	ランダム	4.1	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3
実施例9	HTM01	無	ランダム	4.1	DIBK	23.9	テトラリン	35	29.5
実施例19	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3
実施例27	HTM01	無	ランダム	4.1	TFMB	22	アミルベンゼン	29	25.5
実施例28	HTM01	無	ランダム	4.1	ウンデカン	24	アミルベンゼン	29	26.5
実施例29	HTM01	無	ランダム	4.1	DIBK	23.9	アミルベンゼン	29	26.5
実施例30	HTM01	無	ランダム	4.1	MIBK	23.6	キシレン	29	26.3
実施例31	HTM01	無	ランダム	4.1	MIBK	23.6	メシチレン	28	25.8
実施例32	HTM01	無	ランダム	4.1	MIBK	23.6	シクロヘキシルベンゼン	34	28.8
実施例33	HTM01	無	ランダム	4.1	MIBK	23.6	1-メチルナフタレン	39	31.3
実施例34	HTM01	無	ランダム	4.1	MIBK	23.6	ブチルフェニルエーテル	31	27.3
実施例35	HTM01	無	ランダム	4.1	MIBK	23.6	安息香酸エチル	35	29.3
実施例36	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	アミルベンゼン	29	26.3
実施例37	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	キシレン	29	26.3
実施例38	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	メシチレン	28	25.8
実施例39	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	シクロヘキシルベンゼン	34	28.8
実施例40	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	1-メチルナフタレン	39	31.3
実施例41	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	ブチルフェニルエーテル	31	27.3
実施例42	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	安息香酸エチル	35	29.3

* TFMB:トリフルオロメチルペンゼン, MIBK:メチルイソブチルケトン, DIBK:ジイソブチルケトン

[0309] 表3の結果からも明らかなように、実施例27～42は、接触角の値が低

く、低表面エネルギー膜上であっても有機発光素子用インク組成物を好適に塗布できることが分かる。また、実施例 27～42 の有機発光素子用インク組成物を用いてなる有機発光素子は、輝度ムラが少ないことが分かる。

[0310] ここで、実施例 1、5、および 9 と、実施例 27～29 とを対比すると、実施例 27～29 において使用する芳香族溶媒の表面張力が 30 mN/m 以下、または式 (1) で表される溶媒表面エネルギー A が 28 未満であると、有機発光素子用インク組成物の接触角が顕著に高いことが分かる。

[0311] また、実施例 8、33、および 35 と、実施例 30～32 および 34 と、を対比すると、実施例 30～32 および 34 において使用する芳香族溶媒の表面張力が 35 mN/m 未満、または式 (1) で表される溶媒表面エネルギー A が 29 未満であると、有機発光素子用インク組成物の接触角が高いことが分かる。特に、実施例 31 において芳香族溶媒の表面張力が 28 mN/m 以下、または式 (1) で表される溶媒表面エネルギー A が 26 未満であると、有機発光素子用インク組成物の接触角が顕著に高いことが分かる。

[0312] さらに、実施例 40 と、実施例 19、36～39、および 41～42 とを対比すると、実施例 19、36～39、および 41～42 で使用する芳香族溶媒の表面張力が 36 mN/m 未満、または式 (1) で表される溶媒表面エネルギー A が 30 未満であると、有機発光素子用インク組成物の接触角が高いことが分かる。

[0313]

[表4]

	第1の有機 発光素子材料	シベリング剤			第1の溶媒		芳香族溶媒		評価結果	
		芳香族含有 モノマー	重合形態	ケイ素含有率 (質量%)	種類	表面張力 (mN/m)	種類	表面張力 (mN/m)	式(1)	接触角 輝度ムラ
実施例17	HTM01	有	ブロック	20.0	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	◎ ◎◎
実施例18	HTM01	有	ブロック	20.0	デカン	23	テトラリン	35	29	◎ ◎◎
実施例19	HTM01	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3	◎ ◎◎
実施例43	HTM02	有	ブロック	20.0	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	◎ ◎◎
実施例44	HTM02	有	ブロック	20.0	デカン	23	テトラリン	35	29	◎ ◎◎
実施例45	HTM02	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3	◎ ◎◎
実施例46	HTM02	有	ブロック	20.0	DIBK	23.9	テトラリン	35	29.5	◎ ◎◎
実施例47	HTM03	有	ブロック	20.0	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	◎ ◎◎
実施例48	HTM03	有	ブロック	20.0	デカン	23	テトラリン	35	29	◎ ◎◎
実施例49	HTM03	有	ブロック	20.0	MIBK	23.6	テトラリン	35	29.3	◎ ◎◎
実施例50	HTM03	有	ブロック	20.0	DIBK	23.9	テトラリン	35	29.5	◎ ◎◎

* TFMB:トリフルオロメトキシベンゼン, MIBK:メチルイソブチルケトン, DIBK:ジイソブチルケトン

[0314] [表5]

	第1の有機 発光素子材料	レベリング剤			第1の溶媒		芳香族溶媒		式(1)	評価結果	
		芳香族含有 モノマー	重合形態	ケイ素含有率 (質量%)	種類	表面張力 (mN/m)	種類	表面張力 (mN/m)		接触角	輝度ムラ
実施例1	HTM01	無	ランダム	4.1	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	○	△
実施例17	HTM01	有	ブロック	20.0	TFMB	22	テトラリン	35	28.5	◎	◎◎
比較例1	HTM01	無	ランダム	4.1	-	-	テトラリン	35	35	×	×
比較例2	HTM01	有	ブロック	20.0	-	-	テトラリン	35	35	×	×

* TFMB:トリフルオルオロメキシベンゼン

[0315] 表4の結果からも明らかなように、実施例17～19と、実施例43～46と、実施例47～50とを対比すると、いずれも同等の結果となっていることがわかる。

[0316] また、表5の結果からも明らかなように、比較例1および2は接触角が高く、輝度ムラも大きいことが分かる。

請求の範囲

[請求項1] 第1の有機半導体素子材料、レベリング剤、第1の溶媒、および芳香族溶媒を含み、

前記レベリング剤が、少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体であり、

前記第1の溶媒の表面張力が25 mN/m以下である、有機半導体素子用インク組成物。

[請求項2] 前記レベリング剤が、芳香族含有モノマーを単量体単位としてさらに含む、請求項1に記載の有機半導体素子用インク組成物。

[請求項3] 前記レベリング剤が、ブロック共重合体を含む、請求項1または2に記載の有機半導体素子用インク組成物。

[請求項4] 前記レベリング剤のケイ素含有率が、10質量%以上である、請求項1～3のいずれか1項に記載の有機半導体素子用インク組成物。

[請求項5] 前記第1の溶媒の表面張力が、23 mN/m未満である、請求項1～4のいずれか1項に記載の有機半導体素子用インク組成物。

[請求項6] 前記芳香族溶媒の表面張力が、36 mN/m未満である、請求項1～5のいずれか1項に記載の有機半導体素子用インク組成物。

[請求項7] 下記式(1)：

[数1]

$$A = \left(E_1 \times \frac{W_1}{W_1 + W_2} \right) + \left(E_2 \times \frac{W_2}{W_1 + W_2} \right) \quad (1)$$

(上記式中、 E_1 は、前記第1の溶媒の表面張力であり、 W_1 は、前記第1の溶媒の質量であり、 E_2 は、前記芳香族溶媒の表面張力であり、 W_2 は、前記芳香族溶媒の質量である。)

で表される溶媒表面エネルギーAが、30未満である、請求項1～6のいずれか1項に記載の有機半導体素子用インク組成物。

[請求項8] 前記第1の有機半導体素子材料が、正孔輸送材料である、請求項1

～ 7 に記載の有機半導体素子用インク組成物。

[請求項9] 前記有機半導体が、有機発光素子である、請求項 1 ～ 8 のいずれか 1 項に記載の有機半導体素子用インク組成物。

[請求項10] 第 2 の有機半導体素子材料を含む第 2 の層と、
第 1 の有機半導体素子材料およびレベリング剤を含み、前記第 2 の層の直上に配置される第 1 の層と、を有し、
前記第 2 の層の表面エネルギーが 28 mN/m 以下であり、
前記レベリング剤が、少なくともシロキサンモノマーを単量体単位として含む重合体である、有機半導体素子。

[請求項11] 前記第 1 の有機半導体素子材料が、正孔輸送材料である、請求項 10 または 11 に記載の有機半導体素子。

[請求項12] 有機発光素子である、請求項 12 に記載の有機半導体素子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/074095

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/14(2006.01)i, C09D11/00(2014.01)i, H01L51/50(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)

H05B33/14, C09D11/00, H01L51/50

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

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

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2010-70511 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 02 April 2010 (02.04.2010), paragraphs [0001], [0065], [0108] to [0114] (Family: none)	1, 5-12 2-4
Y	JP 2014-205830 A (Kyushu University), 30 October 2014 (30.10.2014), paragraphs [0016] to [0047], [0107] to [0136] (Family: none)	2-4
A	JP 2013-126364 A (Toyota Industries Corp.), 24 June 2013 (24.06.2013), paragraph [0026] & US 2014/0319967 A1 & WO 2013/089023 A1	1-12

☒ 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
31 October 2016 (31.10.16)

Date of mailing of the international search report
15 November 2016 (15.11.16)

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

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/074095

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 8-504674 A (University of New Mexico), 21 May 1996 (21.05.1996), page 13, example 2 & US 5565142 A & WO 1994/025149 A1 & EP 707518 A	1-12

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H05B33/14(2006.01)i, C09D11/00(2014.01)i, H01L51/50(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H05B33/14, C09D11/00, H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

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

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y	JP 2010-70511 A（三菱化学株式会社）2010.04.02, [0001], [0065], [0108]-[0114]（ファミリーなし）	1, 5-12 2-4
Y	JP 2014-205830 A（国立大学法人九州大学）2014.10.30, [0016]-[0047], [0107]-[0136]（ファミリーなし）	2-4
A	JP 2013-126364 A（株式会社豊田自動織機）2013.06.24, [0026] & US 2014/0319967 A1 & WO 2013/089023 A1	1-12

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

31.10.2016

国際調査報告の発送日

15.11.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

高松 大

20

3310

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 8-504674 A (ユニヴァーシティ オブ ニュー メキシコ) 1996.05.21, 第 13 頁実施例 2 & US 5565142 A & WO 1994/025149 A1 & EP 707518 A	1-12