

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2013 年 11 月 14 日(14.11.2013)



(10) 国際公開番号
WO 2013/168534 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) *H01L 27/32* (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01) *H05B 33/10* (2006.01)
G09F 9/30 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/061538
- (22) 国際出願日: 2013 年 4 月 18 日(18.04.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2012-107163 2012 年 5 月 9 日(09.05.2012) JP
- (71) 出願人: コニカミノルタ株式会社(KONICA MINOLTA, INC.) [JP/JP]; 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 及川 和博(OIKAWA, Kazuhiro); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号
コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 岩崎 利彦(IWASAKI, Toshihiko); 〒1007015 東京都千代田

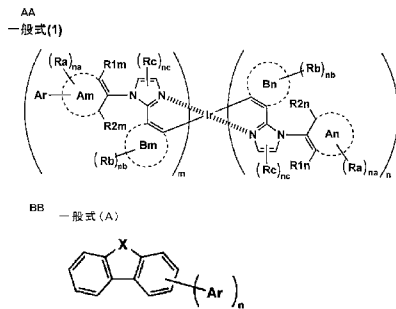
区丸の内二丁目 7 番 2 号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP).

- (74) 代理人: 特許業務法人光陽国際特許事務所(KOYO INTERNATIONAL PATENT FIRM); 〒1000006 東京都千代田区有楽町一丁目 1 番 3 号 東京宝塚ビル 17 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (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

[続葉有]

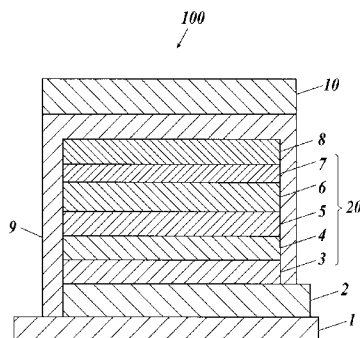
(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT, PRODUCTION METHOD FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT, DISPLAY DEVICE, AND ILLUMINATION DEVICE

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、表示装置および照明装置



(57) Abstract: An organic EL element (100) has, arranged between a positive electrode (2) and a negative electrode (8), at least one organic compound layer including a light-emitting layer (5). At least one layer of the organic compound layer is formed using a wet process and includes an iridium complex indicated by general formula (1) and a host compound indicated by general formula (A).

(57) 要約: 有機EL素子(100)は、陽極(2)と陰極(8)との間に、発光層(5)を含む少なくとも1層の有機化合物層が配置され、有機化合物層の少なくとも1層が、ウェットプロセスにより成膜され、かつ、一般式(1)で表されるイリジウム錯体と、一般式(A)で表されるホスト化合物と、を含んでいる。



AA General formula (1)
BB General formula (A)



ア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ
(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR,
GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT,
NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,
NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

有機エレクトロルミネッセンス素子、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、表示装置および照明装置

技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、表示装置および照明装置に関する。

背景技術

[0002] 従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（ＥＬＤ）が知られている。ＥＬＤの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子（無機ＥＬ素子）や有機エレクトロルミネッセンス素子（有機ＥＬ素子）が挙げられる。

[0003] 無機ＥＬ素子は、平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。

[0004] 一方、有機ＥＬ素子は、発光する化合物を含有する発光層を、陰極と陽極とで挟んだ構成を有し、発光層に電子および正孔を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・リン光）を利用して発光する素子である。有機ＥＬ素子は、数Ｖ～数十Ｖ程度の電圧で発光が可能であり、さらに自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、また、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。さらには、有機ＥＬ素子は、面光源であるという特徴も有している。

[0005] この特性を有効に活用できる用途として、照明用光源や様々なディスプレイのバックライトがある。特に近年では、需要の増加が著しい液晶フルカラーディスプレイのバックライトとして用いることが好適となっている。

[0006] 有機ＥＬ素子をこのような照明用光源やディスプレイのバックライトとして使用する場合、発光色が白色またはいわゆる電球色（以下、総合して白色

と称す。)を呈する光源として用いることになる。

[0007] 白色発光を得るためには、B（青色）／G（緑色）／R（赤色）の3層の発光層を積層したり、B／Y（黄色）のように補色関係にある2層の発光層を積層したりする方法（たとえば、特許文献1参照）、多色の発光画素、たとえば、青・緑・赤の3色を塗り分け、同時に発光させ、混色して白色を得る方法、色変換色素を用いて白色を得る方法（たとえば、青色発光ドーパントと色変換蛍光色素の組み合わせ）、1つの素子中に発光波長の異なる複数の発光ドーパントを調製し混色により白色を得る方法等が考えられ、これらの方法により白色発光を達成することができる。

[0008] しかし、発光色の異なる発光層を積層すると、駆動電流量の変動や連続駆動時の経時変化により発光位置がずれるため、発光色が変わってしまうという問題があった。多色の発光画素の塗り分けによる方法はマスクの位置合わせ等の製造工程が煩雑で歩留まりが悪く、色変換方式では発光効率が低いという問題がある。

[0009] これらに対し、単一の発光層に全ての発光ドーパントを混在させることで、発光位置のずれを抑える方法がある。しかし、発光ドーパントが混在すると、各発光ドーパントの発光エネルギーレベルの違いによってエネルギー移動が起きてしまう。

[0010] たとえば、特許文献2には、同一層に共存する発光ドーパント間のエネルギー移動を利用して効率を向上させる方法が開示されている。

しかし、特許文献2に開示されている技術では、発光色の異なる発光ドーパントを混合しても、発光するのは一方の発光ドーパントだけであり、白色発光を得るのには適さない。すなわち、単一の発光層で好ましい白色発光を得るためには、多層構成のときと同じ発光ドーパントの比率では白色発光を得ることはできず、発光エネルギーレベルの高い発光ドーパントに対して、発光エネルギーレベルの低い発光ドーパントの含有量を極少量にしなければならず、蒸着によってこのような発光層を作製しようとしても、ごく微量の材料比率の制御が難しく、発光色の安定した有機EL素子の生産は困難であ

った。

[0011] 一方、発光層を含む有機化合物層の製造方法としては、ウェットプロセス（スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、スプレー法、印刷法等）がある。

ウェットプロセスは、真空プロセスを必要とせず連続生産が簡便であるという理由で、近年注目を集める製造方法となっている。ウェットプロセスにおいては、塗布液調液時の材料混合比を調整することにより、所望の組成の発光層を形成することができ、混合比が大きく異なる組成の発光層を形成する場合においても優位である。

[0012] しかし、ウェットプロセスでは塗布溶媒等の不純物による発光阻害や空孔形成、加熱乾燥による素材劣化、さらには塗布時に特定の素材同士が凝集し結晶化することによる発光阻害の問題があり、蒸着素子に比べて高効率のウェットプロセスによる素子はいまだに得られていないのが現状である。

[0013] 発光阻害の軽減および発光効率向上の手段として、複数のホスト材料を混合して発光層を形成する方法が提案されている。

[0014] たとえば、特許文献3では、1種のリン光発光ドーパントに対し2種のホスト材料を用いることで、エネルギー移動による発光阻害緩和と隣接層からの注入障壁軽減を両立し、高効率、高色純度かつ長寿命な有機EL素子を達成している。

[0015] 一方、発光層の問題点として、輸送性を高めて低電圧化し、高効率化を図る課題がある。これらを解決するために、電荷の輸送に関わるドーパントを高濃度添加し輸送性を高める方法が一般的に知られているが、十分な結果が得られていない。

[0016] 上記特許文献を参考に、ウェットプロセスによる白色発光層を含む有機EL素子の開発を試みたところ、上記特許文献には記載されていなかった新たな問題があることが判明した。

[0017] すなわち、ウェットプロセスにおいて、高効率かつ長寿命の発光を得る場合、電荷輸送を担う発光ドーパントを高濃度化したいが、異なるホスト化合

物を複数用いた場合でも発光ドーパント同士の凝集が避けられず、発光阻害等の問題を解決するには十分とはいえなかった。上記素材凝集と電荷輸送性とはトレードオフの関係にあり、白色発光の場合、これらの課題はさらに複雑となり、添加量を上げて発光ロスが少なく、さらに電荷輸送性を両立できる材料が求められていた。

先行技術文献

特許文献

[0018] 特許文献1：特開平7-041759号公報

特許文献2：特開2006-041395号公報

特許文献3：特開2007-251097号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0019] したがって、本発明の主な目的は、発光ドーパント同士の凝集・結晶化を抑制し、駆動電圧、発光効率、発光寿命および溶解性に優れた有機EL素子を提供することにある、併せてこれを備えた表示装置および照明装置、有機EL素子の製造方法を提供することにある。

[0020] また、本発明の他の目的は、異なる発光色の発光ドーパントを複数含む白色発光層をウェットプロセスにより成膜した場合であっても、発光ドーパント同士の凝集・結晶化を抑制し、駆動電圧、発光効率、発光寿命および溶解性に優れた有機EL素子を提供することである。

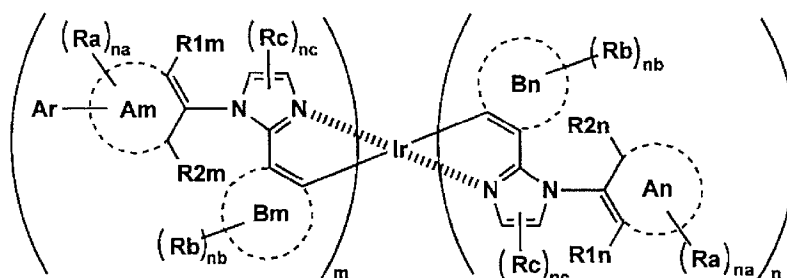
[0021] 上記課題を解決するため、本発明によれば、

陽極と陰極との間に、発光層を含む少なくとも1層の有機化合物層が配置された有機エレクトロルミネセンス素子において、

前記有機化合物層の少なくとも1層が、ウェットプロセスにより成膜され、かつ、一般式(1)で表されるイリジウム錯体と、一般式(A)で表されるホスト化合物と、を含んでいることを特徴とする有機エレクトロルミネセンス素子が提供される。

[0022] [化1]

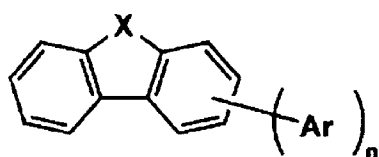
一般式(1)



[0023] 一般式(1)中、「環Am」、「環An」、「環Bm」および「環Bn」は、5員または6員の芳香族炭化水素環または芳香族複素環を表す。「Ar」は、芳香族炭化水素環、芳香族複素環、非芳香族炭化水素環または非芳香族複素環を表す。「R1m」、「R2m」、「R1n」および「R2n」は、それぞれ独立に、炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「Ra」、「Rb」および「Rc」は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよく、「Ra」は「Ar」と環を形成していてもよい。 n_a は1～3の整数を表し、 n_b は1～4の整数を表し、 n_c は1または2を表す。 m は1または2を表し、 n は1または2を表すが、 $m+n$ は3である。なお、Irに配位している3つの配位子の構造がすべて同じであることはない。

[0024] [化2]

一般式(A)



[0025] 一般式(A)中、「X」は、 NR' 、O、S、 $\text{CR}'\text{R}''$ または SiR'

R'' を表す。R' および R'' は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を表す。「Ar」は、芳香環を表す。n は 0 ～ 8 の整数を表す。

発明の効果

[0026] 本発明によれば、発光ドーパント同士の凝集・結晶化を抑制し、駆動電圧、発光効率、発光寿命および溶解性に優れた有機 EL 素子を提供することができ、併せてこれを備えた表示装置および照明装置、有機 EL 素子の製造方法を提供することができる。

[0027] 本発明の効果の発現機構ないし作用機構については、詳細は不明であり、推測の域を脱しないが、以下のように推察している。

[0028] すなわち、従来のトリス体（3 つある 2 座配位子がすべて同じ構造）のイリジウム錯体ドーパントでは、ドーパントドーパント相互作用部位が少なくとも 6 か所存在するため、同分子相互作用確率が高いのに対し、本発明にかかるイリジウム錯体ドーパントは、非対称であるため、ドーパント間の相互作用部位が 2 か所もしくは 4 か所に特定され、同分子が多数連なるようなクラスターが形成されにくくなる。その結果、溶解性が高くなり、析出しないため、塗布液を長時間保存でき、生産効率向上しいてはコスト削減につながる。

また、クラスターが形成されにくいことから、塗布成膜し乾燥膜とする際、ホスト化合物を巻き込み易く、高ドーブが可能であり、輸送性向上と濃度消光のトレードオフ関係を改善することができるものと考えられる。

さらに、ドーパント同士の凝集・結晶化を抑制することができるため、ドーパント濃度を高めても濃度消光することなく発光効率を高められると考えられる。

[0029] 一方で、従来のトリス体のイリジウム錯体とホスト化合物との組み合わせでは、上記のとおり、ドーパントドーパント相互作用部位が 6 か所存在し、同分子相互作用確率が高くなっていることから、ドーパントーホスト相互作用を優位とする、すなわち、ホスト分子間にドーパント分子を均一に分散させるためには、よりホスト化合物の混合比率を多くする必要があった。

本発明では、ヘテロ体のイリジウム錯体を用いているため、相互作用エネルギーの安定化部位を2か所もしくは4か所に限定でき、連鎖的にドーパントが凝集していくことを抑制することができるから、ドーパントをより少ないホスト分子で分散可能とし、結果としてドーパントを高濃度でドーピングすることができる。

さらに、ドーパントドーパント相互作用が軽減されることで、ドーパントーホスト相互作用が従来のトリス体を用いた場合よりも強まることが予想され、ホスト化合物の結晶化による高電圧化や、結晶中に閉じ込められてしまう溶媒の滞留を抑制できると推測される。

[0030] 本発明では、溶解性を向上させる観点から、ホスト化合物として、一般式(A)で表されるホスト化合物を用い、より好ましくはジベンゾフラン骨格を持つ非対称なホスト化合物を用いるのがよい。

[0031] さらに驚くべきことに、本発明のイリジウム錯体とホスト化合物の組み合わせにより、塗布膜の課題である膜中に残留する溶媒による性能劣化も軽減できることを見出した。

図面の簡単な説明

[0032] [図1]本発明の有機EL素子の概略構成を示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0033] 以下、本発明とその構成要素、および本発明を実施するための形態・態様について詳細な説明をするが、本発明はこれらに限定されるものではない。

なお、本発明において、「～」は、その前後に記載される数値を下限値および上限値として含む意味で使用する。

[0034] 《有機EL素子の構成》

図1に示すとおり、有機EL素子100は、支持基板1上に、陽極2、有機化合物層の積層体20、陰極8が順次積層され、構成されている。

[0035] 積層体20は、有機化合物を含有する各層からなり、正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6、電子注入層7を有している。

その他、正孔阻止層や電子阻止層等の有機化合物層が設けられていてもよ

い。

[0036] 陽極 2、積層体 20、陰極 8 は、封止接着剤 9 を介して、封止部材 10 によって封止されている。

[0037] なお、有機 EL 素子 100 のこれらの層構造（図 1 参照）は単に好ましい具体例を示したものであり、本発明はこれらに限定されない。

[0038] たとえば、有機 EL 素子 100 は、下記（i）～（ii）の層構造を有していてもよい。

[0039] （i）陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極

（ii）陽極／正孔注入層／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

[0040] 本発明の有機 EL 素子においては、青色発光ドーパントの発光極大波長は 430～480 nm の範囲にあるものが好ましく、緑色発光ドーパントの発光極大波長は 510～550 nm の範囲内、赤色発光ドーパントの発光極大波長は 600～640 nm の範囲にあることが好ましく、これらを用いた表示装置であることが好ましい。また、これらの少なくとも 3 色の発光層を積層して白色発光層としたものであってもよいし、同一層に複数の発光色を混ぜてもよい。さらに、発光層間には非発光性の中間層を有していてもよい。

塗布方式で成膜する場合、コストと簡易性の問題から単一層に 3 色の発光ドーパントを混ぜた白色層であることが好ましい。

本発明の有機 EL 素子 100 としては白色発光層であることが好ましく、これらを用いた照明装置であることが好ましい。

[0041] 本発明の有機 EL 素子 100 を構成する各層について説明する。

[0042] 《発光層 5》

本発明にかかる発光層は、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。

[0043] 発光層の膜厚の総和は特に制限はないが、膜の均質性や、発光時に不必要な高電圧を印加するのを防止し、かつ、駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、2 nm～5 μ mの範囲に調整することが好ましく、さらに好ましくは2～200 nmの範囲に調整され、特に好ましくは、10～100 nmの範囲である。

[0044] 本発明の有機EL素子の発光層には、発光ドーパント（リン光発光ドーパントや蛍光発光ドーパント等）と、ホスト化合物とが含有される。

[0045] (1) 発光ドーパント

発光ドーパントとしては、蛍光発光ドーパントやリン光発光ドーパント（リン光性化合物、リン光発光性化合物等ともいう。）を挙げることができるが、より発光寿命が長く、濃度消光の影響を受けやすいリン光発光ドーパントであることが分子凝集を抑制する観点から好ましく、具体的には、少なくとも青色リン光発光ドーパントである後述の一般式（1）で表されるイリジウム錯体が用いられる。

[0046] (1. 1) リン光発光ドーパント

発光ドーパントとしては、高い発光効率が得られることからリン光発光ドーパント（リン光性化合物ともいう。）が好ましい。リン光発光ドーパントとは、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、リン光量子収率が25℃において0.01以上の化合物であることが好ましい。より好ましくは0.1以上である。本発明では、それ以外に発光層に含まれる化合物をホスト化合物とする。

[0047] なお、発光層中におけるホスト化合物とリン光発光ドーパントの割合は、発光層全体に含まれる化合物の質量を100%とすると、各々の化合物で1～99質量%の間であればどのような割合でもよいが、好ましくはリン光発光ドーパントの割合よりもホスト化合物の割合が大きい方がよく、より好ましくはリン光発光ドーパントの割合は1～30質量%である。

[0048] 上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398ページ（1992年版、丸善）に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量

子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に用いられるリン光発光ドーパントとは、任意の溶媒のいずれかにおいて上記リン光量子収率が達成される化合物である。

[0049] 発光ドーパントの最大発光波長とは、発光スペクトルの極大値において、発光強度が最大であるところの波長である。本発明では、発光ドーパントの発光スペクトルを以下のように測定する。

まず、発光ドーパントの吸収スペクトルを測定し、300～350 nmの範囲の吸収最大波長を励起光として設定する。設定した励起光を用いて、窒素バブリングを行いながら蛍光光度計F-4500（日立製作所製）にて発光スペクトルを測定する。なお、使用できる溶媒に制限はないが、化合物の溶解性の観点から2-メチルテトラヒドロフラン、ジクロロメタン等が好ましく用いられる。測定時の濃度は充分希釈していることが好ましく、具体的には $10^{-6} \sim 10^{-4}$ mol/Lの範囲で測定することが好ましい。また、測定時の温度としては特に制限はないが、一般的には室温～77 Kの範囲の温度設定が行われることが好ましい。

[0050] リン光発光ドーパントの発光原理としては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、このエネルギーをリン光発光ドーパントに移動させることでリン光発光ドーパントからの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光発光ドーパントがキャリアトラップとなり、リン光発光ドーパント上でキャリアの再結合が起こりリン光発光ドーパント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、リン光発光ドーパント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。

[0051] 本発明にかかるリン光発光ドーパントは、少なくとも1種の青色リン光材料を含むものであり、より具体的には、後述の一般式（1）で表されるイリジウム錯体を含むものであるが、白色発光の有機EL素子とする場合には、少なくとも1種の青色リン光材料に加えて、当該青色リン光材料よりもバン

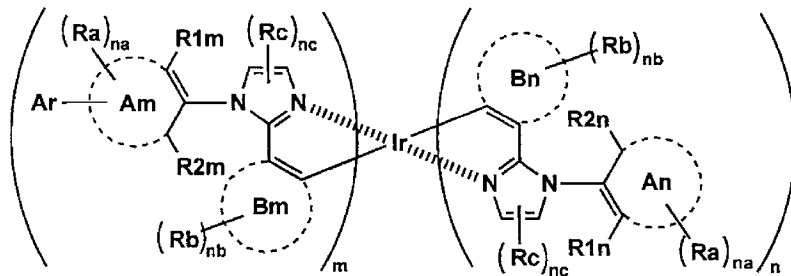
ドギャップエネルギーが低い少なくとも2つのリン光材料が用いられる。青色リン光材料よりもバンドギャップエネルギーが低いリン光発光ドーパントとしては、有機EL素子の発光層に使用される従来公知のものの中から適宜選択して用いることができるが、好ましくは元素の周期表で8～10族の金属を含有する錯体系化合物であり、さらに好ましくはイリジウム化合物、オスmium化合物、または白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

[0052] (1. 1. 1) 一般式(1)で表されるイリジウム錯体（青色リン光発光ドーパント）

以下に、本発明の一般式(1)で表されるイリジウム錯体について説明する。

[0053] [化3]

一般式(1)



[0054] 一般式(1)中、「環Am」、「環An」、「環Bm」および「環Bn」は5員または6員の芳香族炭化水素環または芳香族複素環を表し、「Ar」は芳香族炭化水素環、芳香族複素環、非芳香族炭化水素環または非芳香族複素環を表す。「R1m」、「R2m」、「R1n」および「R2n」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「Ra」、「Rb」および「Rc」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し

、さらに置換基を有していてもよく、「R a」は「A r」と環を形成していてもよい。n aは1～3の整数を表し、n bは1～4の整数を表し、n cは1または2を表す。mは1または2を表し、nは1または2を表し、m+nは3である。なお、l rに配位している3つの配位子の構造がすべて同じであることはない。

[0055] 一般式(1)において、「環A n」、「環A m」、「環B n」および「環B m」で表される5員または6員の芳香族炭化水素環としては、たとえば、ベンゼン環が挙げられる。

一般式(1)において、「環A n」、「環A m」、「環B n」および「環B m」で表される5員または6員の芳香族複素環としては、たとえば、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、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、チアゾール環等が挙げられる。好ましくは「環B n」および「環B m」の少なくとも一方がベンゼン環であり、より好ましくは「環A n」および「環A m」の少なくとも一方がベンゼン環である。

[0056] 一般式(1)において、「A r」で表される芳香族炭化水素環としては、たとえば、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナфтаセン環、トリフェニレン環、オーテルフェニル環、m-テルフェニル環、p-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。

一般式(1)において、「A r」で表される芳香族複素環としては、たとえば、シロール環、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、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンズイミダゾール環、ベンズチアゾール環、

ベンズオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、チエノチオフェン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環（カルバゾール環を構成する炭素原子の任意の一つ以上が窒素原子で置き換わったものを表す）、ジベンゾシロール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、ベンゾチオフェン環やジベンゾフラン環を構成する炭素原子の任意の一つ以上が窒素原子で置き換わった環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフェン環、アクリジン環、ベンゾキノリン環、フェナジン環、フェナントリジン環、フェナントロリン環、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、ナフトフラン環、ナフトチオフェン環、ナフトジフラン環、ナフトジチオフェン環、アントラフラン環、アントラジフラン環、アントラチオフェン環、アントラジチオフェン環、チアントレン環、フェノキサチイン環、ジベンゾカルバゾール環、インドロカルバゾール環、ジチエノベンゼン環等が挙げられる。

一般式（１）において、「Ar」で表される非芳香族炭化水素環としては、たとえば、シクロアルカン（たとえば、シクロペンタン環、シクロヘキサン環等）、シクロアルコキシ基（たとえば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等）、シクロアルキルチオ基（たとえば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等）、シクロヘキシルアミノスルホニル基、テトラヒドロナフタレン環、9, 10-ジヒドロアントラセン環、ビフェニレン環等が挙げられる。

一般式（１）において、「Ar」で表される非芳香族複素環としては、たとえば、エポキシ環、アジリジン環、チイラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキサラン環、ピロリジン環、ピラゾリジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、 ϵ -カプロラクトン環、 ϵ -カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1

、3-ジオキサン環、1,4-ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1,1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ[2,2,2]-オクタン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、オキサントレン環、チオキサントレン環、フェノキサチン環等が挙げられる。

一般式(1)において、「Ar」で表されるこれらの環は、置換基を有していてもよく、さらに当該置換基同士が互いに結合して環を形成してもよい。

一般式(1)において、「Ar」は、好ましくは芳香族炭化水素環または芳香族複素環であり、より好ましくは芳香族炭化水素環であり、さらに好ましくはベンゼン環である。

[0057] 一般式(1)において、「R_{1m}」および「R_{2m}」で表されるアルキル基としては、たとえば、メチル基、エチル基、トリフルオロメチル基、イソプロピル基、n-ブチル基、t-ブチル基、n-ヘキシル基、2-メチルヘキシル基、ペンチル基、アダマンチル基、n-デシル基、n-ドデシル基等が挙げられる。

一般式(1)において、「R_{1m}」および「R_{2m}」で表される芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基としては、上述の一般式(1)において「Ar」で表される芳香族炭化水素環、芳香族複素環、非芳香族炭化水素環または非芳香族複素環から導出される1価の基が挙げられる。

一般式(1)において、「R_{1m}」および「R_{2m}」で表される炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基がさらに有していてもよい置換基としては、たとえば、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基等が挙げられる。

一般式(1)においては、「R1m」および「R2m」が共に炭素原子数2以上のアルキル基またはシクロアルキル基であることが好ましく、また、「R1m」および「R2m」のいずれか一方が炭素原子数3以上の分岐アルキル基であることも好ましい。また、「R1m」および「R2m」が共に炭素原子数3以上の分岐アルキル基であることがさらに好ましい。

[0058] 一般式(1)において、「R1n」および「R2n」は、上述の一般式(1)における「R1m」および「R2m」と同義である。

[0059] 一般式(1)において、「Ra」、「Rb」および「Rc」で表されるアリール基およびヘテロアリール基としては、上述の一般式(1)において「Ar」で表される芳香族炭化水素環および芳香族複素環から導出される1価の基が挙げられる。

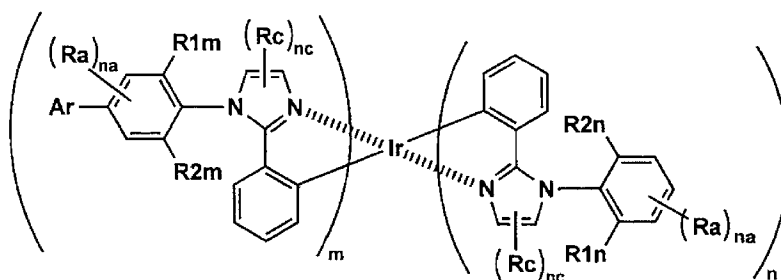
一般式(1)において、「Ra」、「Rb」および「Rc」で表される非芳香族炭化水素環基および非芳香族複素環基としては、上述の一般式(1)において「Ar」で表される非芳香族炭化水素環および非芳香族複素環から導出される1価の基が挙げられる。

[0060] 一般式(1)において、naは1～3の整数を表すが、正面から見て左側の配位子におけるnaは1または2を表し、正面から見て右側の配位子におけるnaは1～3の整数を表す。

[0061] 上記一般式(1)で表されるイリジウム錯体は、下記一般式(2)で表されることが好ましい。

[0062] [化4]

一般式(2)



[0063] 一般式(2)中、「Ar」は芳香族炭化水素環、芳香族複素環、非芳香族

炭化水素環または非芳香族複素環を表す。「R 1 m」, 「R 2 m」, 「R 1 n」および「R 2 n」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「R a」および「R c」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよく、「R a」は「A r」と環を形成していてもよい。n aは1～3の整数を表し、n cは1または2を表す。mは1または2を表し、nは1または2を表し、m+nは3である。なお、I rに配位している3つの配位子の構造がすべて同じであることはない。

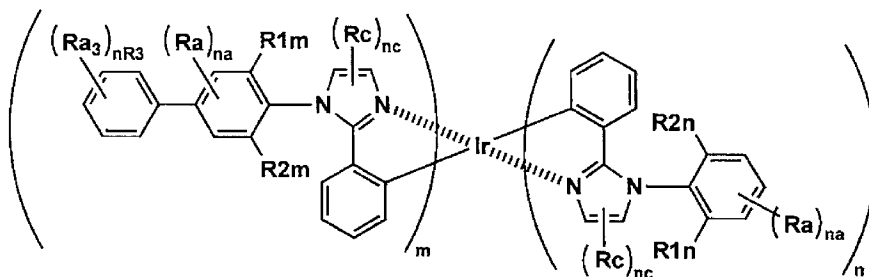
[0064] 一般式(2)において、「A r」、「R 1 m」、「R 2 m」、「R 1 n」、「R 2 n」、「R a」、「R c」、n a、n c、mおよびnは、一般式(1)における「A r」、「R 1 m」、「R 2 m」、「R 1 n」、「R 2 n」、「R a」、「R c」、n a、n c、mおよびnと同義である。

[0065] 本発明にかかる一般式(1), (2)で各々表されるイリジウム錯体は、国際公開第2006/121811号等に記載の公知の方法を参照することにより合成可能である。

[0066] 上記一般式(2)で表されるイリジウム錯体は、下記一般式(3)で表されることが好ましい。

[0067] [化5]

一般式(3)



[0068] 一般式(3)中、「R_{1m}」、「R_{2m}」、「R_{1n}」および「R_{2n}」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「R_a」、「R_c」および「R_{a3}」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。 n_a は1~3の整数を表し、 n_c は1または2を表し、 n_{R3} は1~5の整数を表す。 m は1または2を表し、 n は1または2を表し、 $m+n$ は3である。なお、Irに配位している3つの配位子の構造がすべて同じであることはない。

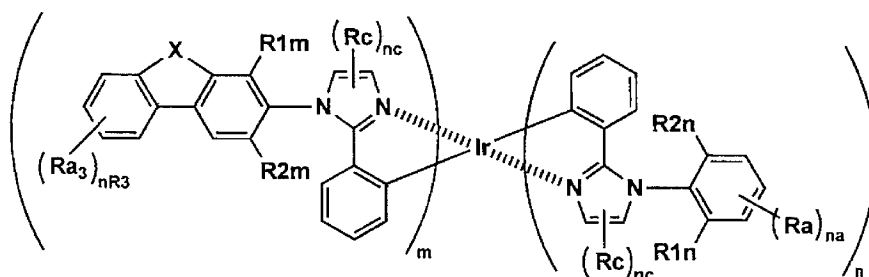
[0069] 一般式(3)において、「R_{1m}」、「R_{2m}」、「R_{1n}」、「R_{2n}」、「R_a」、「R_c」、 n_a 、 n_c 、 m および n は、一般式(1)における「R_{1m}」、「R_{2m}」、「R_{1n}」、「R_{2n}」、「R_a」、「R_c」、 n_a 、 n_c 、 m および n と同義である。

一般式(3)において、「R_{a3}」は、一般式(1)における「R_a」、「R_b」および「R_c」と同義である。

[0070] 上記一般式(1)で表されるイリジウム錯体は、下記一般式(4)で表されることが好ましい。

[0071] [化6]

一般式(4)



[0072] 一般式(4)中、「R_{1m}」、「R_{2m}」、「R_{1n}」および「R_{2n}」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族

複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「R_a」、「R_c」および「R_{a3}」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。n_aは1～3の整数を表し、n_cは1または2を表し、n_{R3}は1～4の整数を表す。「X」はO、S、Si、R_{z1}R_{z2}、NR_{z1}またはCR_{z1}R_{z2}を表し、R_{z1}およびR_{z2}はアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表す。mは1または2を表し、nは1または2を表し、m+nは3である。

[0073] 一般式(4)において、「R_{1m}」、「R_{2m}」、「R_{1n}」、「R_{2n}」、「R_a」、「R_c」、n_a、n_c、mおよびnは、一般式(1)における「R_{1m}」、「R_{2m}」、「R_{1n}」、「R_{2n}」、「R_a」、「R_c」、n_a、n_c、mおよびnと同義である。

一般式(4)において、「R_{a3}」は、一般式(1)における「R_a」、「R_b」および「R_c」と同義である。

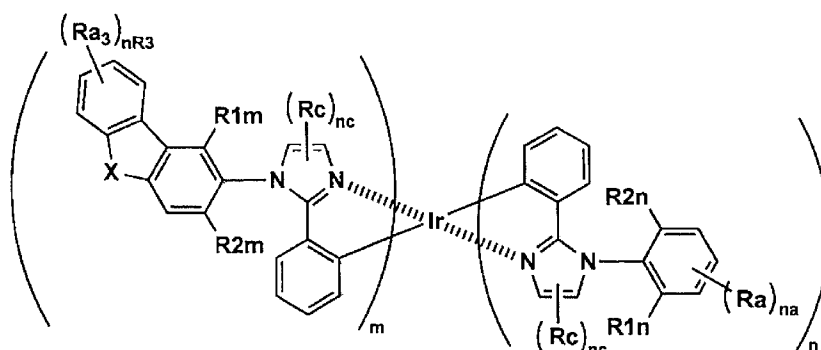
[0074] 一般式(4)における「X」において、R_{z1}およびR_{z2}で表される芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基としては、上記一般式(1)において「A_r」で表される芳香族炭化水素環、芳香族複素環、非芳香族炭化水素環または非芳香族炭化水素環から導出される1価の基が挙げられる。

[0075] 上記一般式(1)で表されるイリジウム錯体は、下記一般式(5)で表されることが好ましい。

[0076]

[化7]

一般式(5)



[0077] 一般式(5)中、「R1m」、「R2m」、「R1n」および「R2n」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「Ra」、「Rc」および「Ra₃」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリーラルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。 n_a は1～3の整数を表し、 n_c は1または2を表し、 n_{R3} は1～4の整数を表す。「X」はO, S, Si, R_{z1}R_{z2}, NR_{z1}またはCR_{z1}R_{z2}を表し、R_{z1}およびR_{z2}はアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表す。 m は1または2を表し、 n は1または2を表し、 $m+n$ は3である。

[0078] 一般式(5)において、「R1m」、「R2m」、「R1n」、「R2n」、「Ra」、「Rc」、 n_a 、 n_c 、 m および n は、一般式(1)における「R1m」、「R2m」、「R1n」、「R2n」、「Ra」、「Rc」、 n_a 、 n_c 、 m および n と同義である。

一般式(5)において、「Ra₃」は、一般式(1)における「Ra」、「Rb」および「Rc」と同義である。

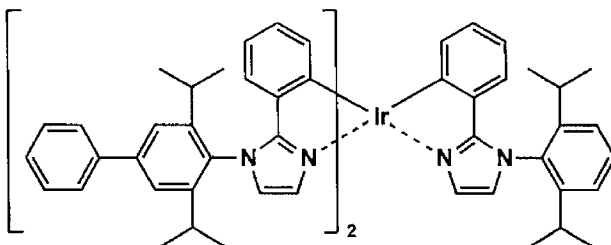
一般式(5)において、「X」は、一般式(4)における「X」と同義で

ある。

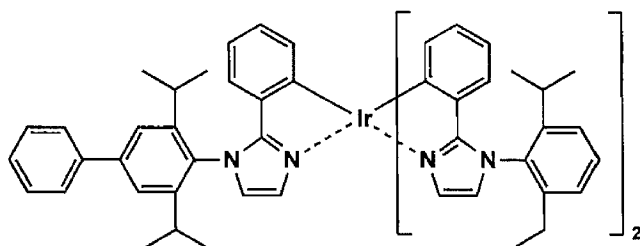
[0079] 以下に、本発明で用いることのできるイリジウム錯体（リン光発光ドーパント）の具体的な化合物を例示する。ただし、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0080] [化8]

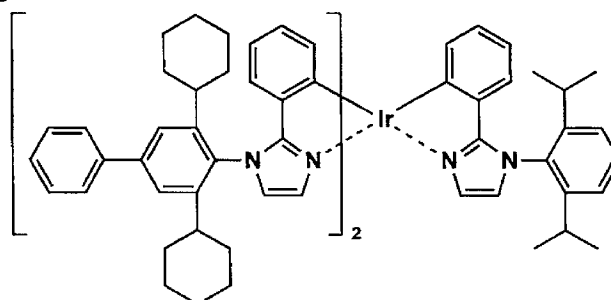
DP-1



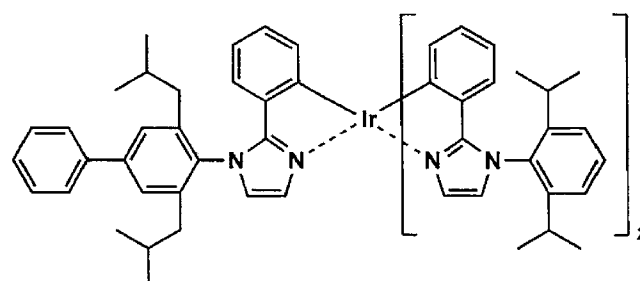
DP-2



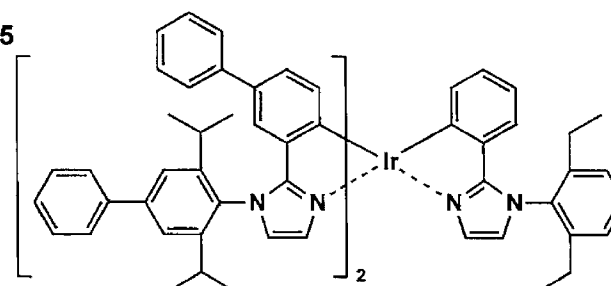
DP-3



DP-4

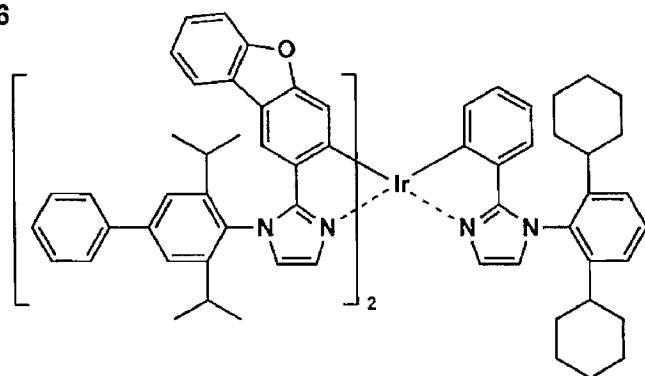


DP-5

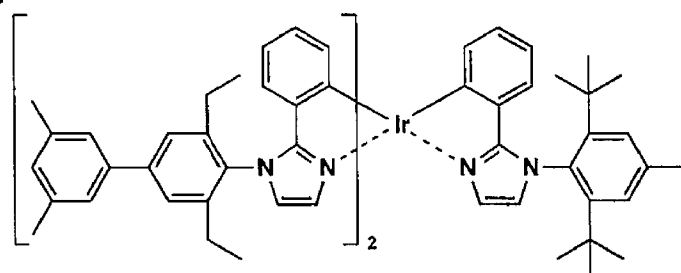


[0081] [化9]

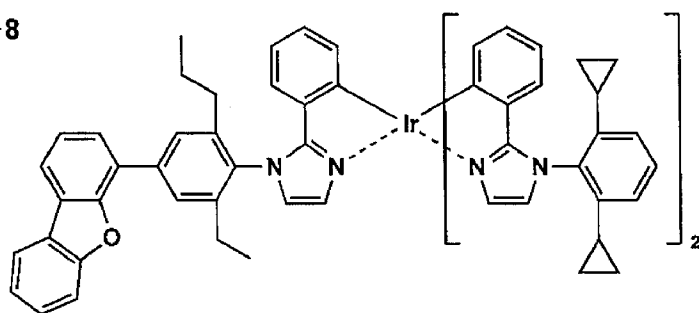
DP-6



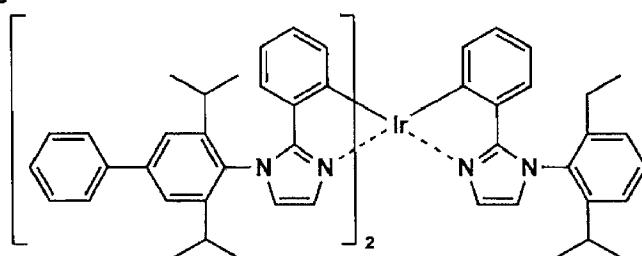
DP-7



DP-8



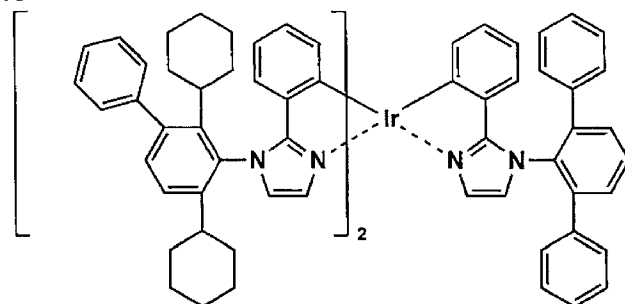
DP-9



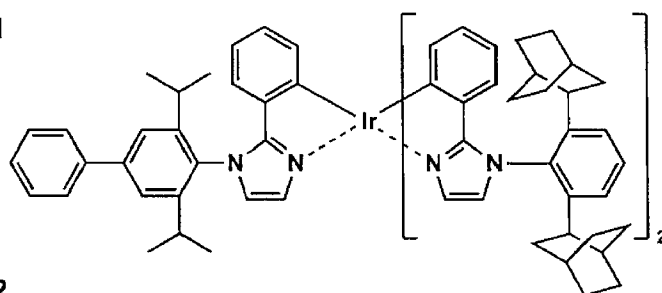
[0082]

[化10]

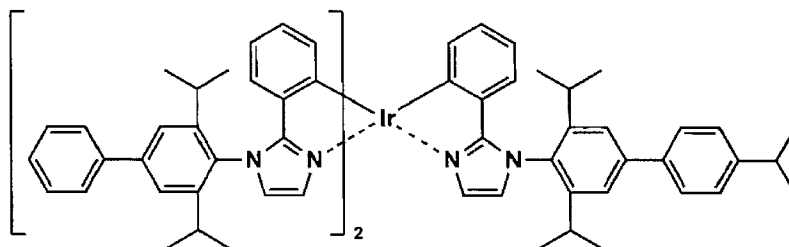
DP-10



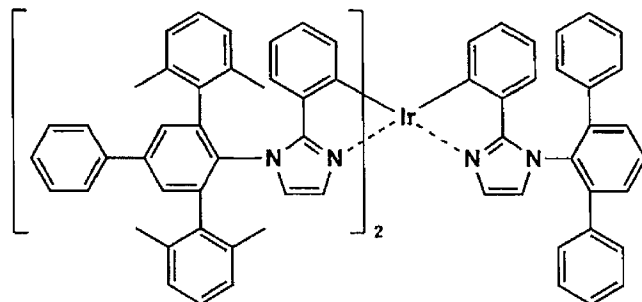
DP-11



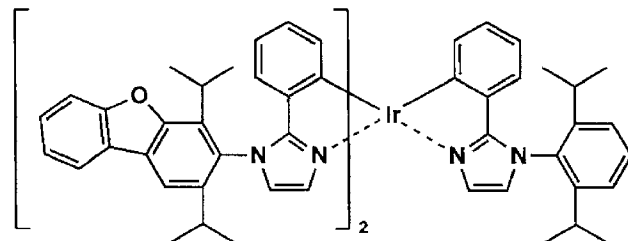
DP-12



DP-13



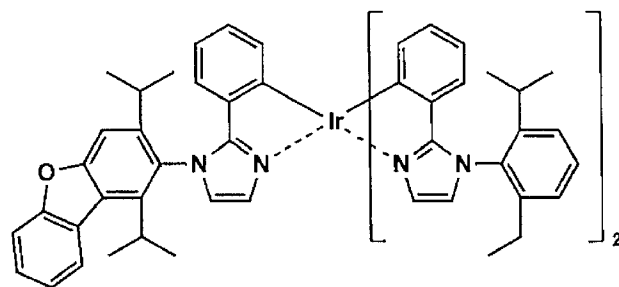
DP-14



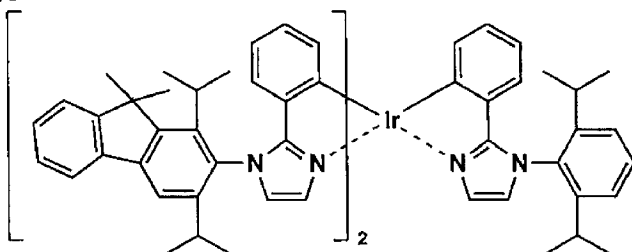
[0083]

[化11]

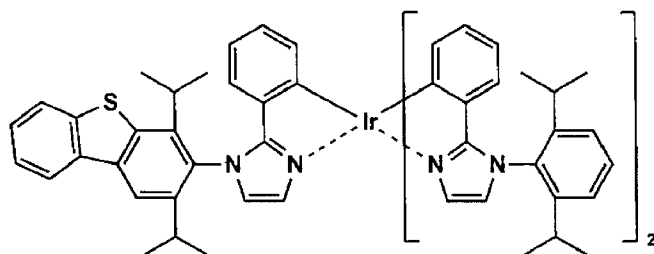
DP-15



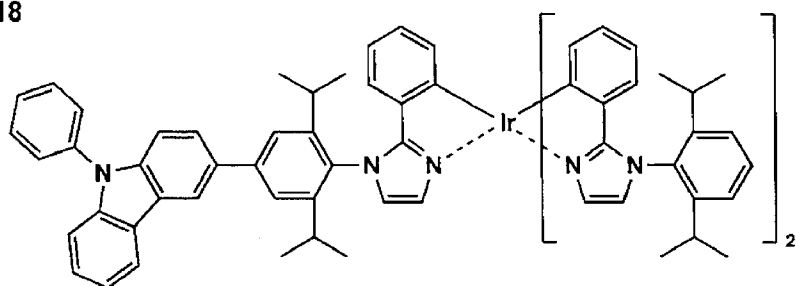
DP-16



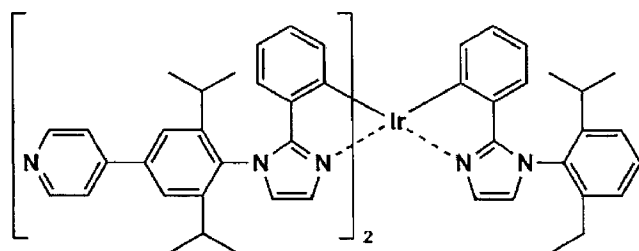
DP-17



DP-18



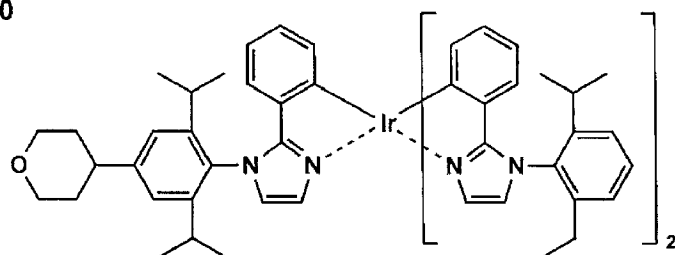
DP-19



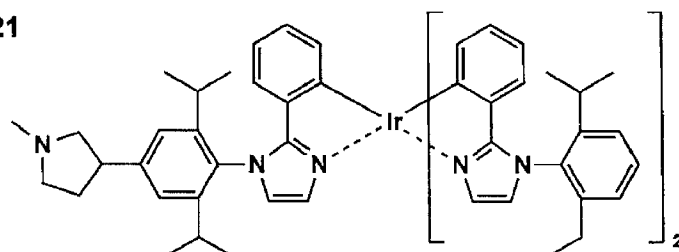
[0084]

[化12]

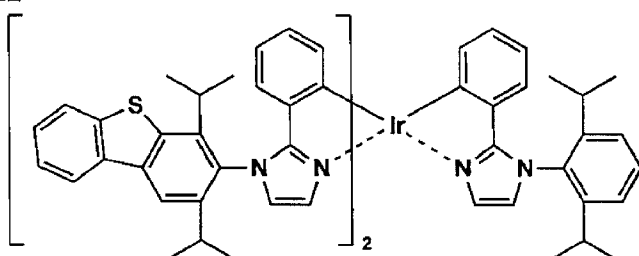
DP-20



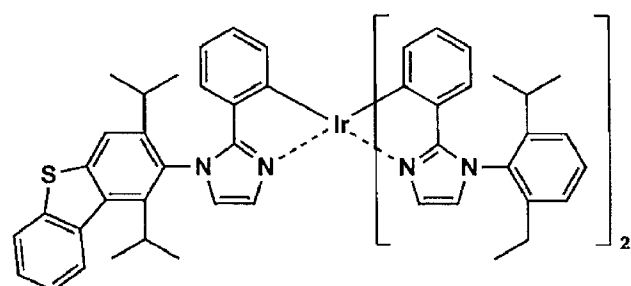
DP-21



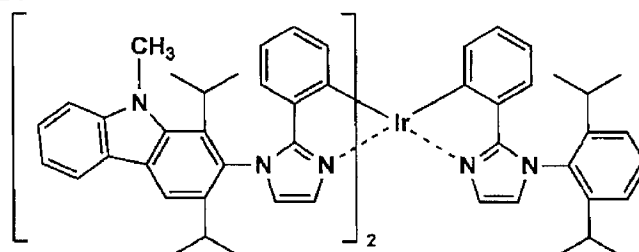
DP-22



DP-23



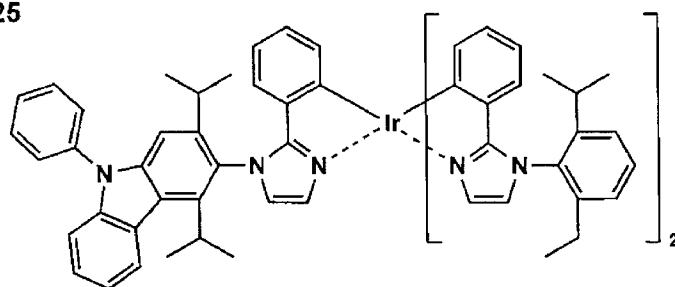
DP-24



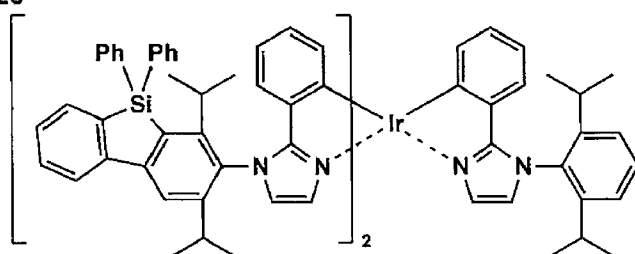
[0085]

[化13]

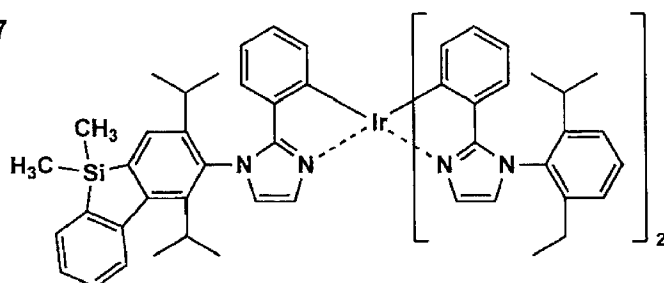
DP-25



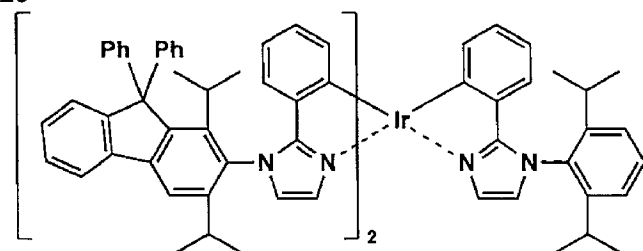
DP-26



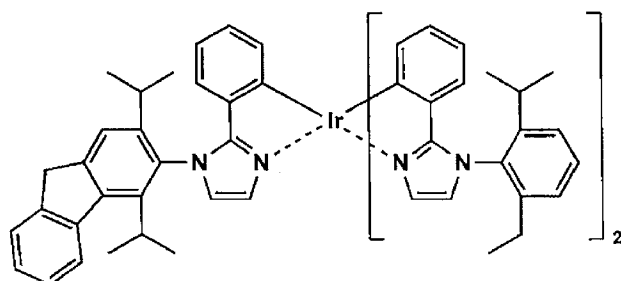
DP-27



DP-28



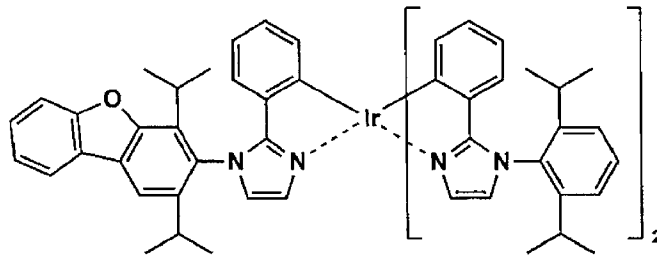
DP-29



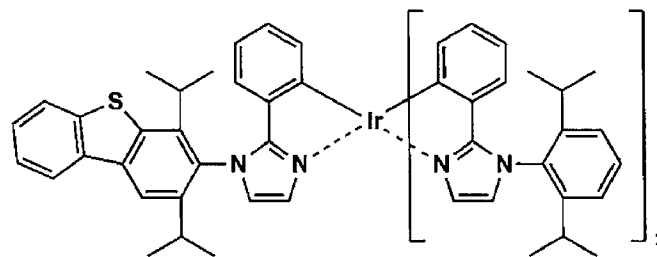
[0086]

[化14]

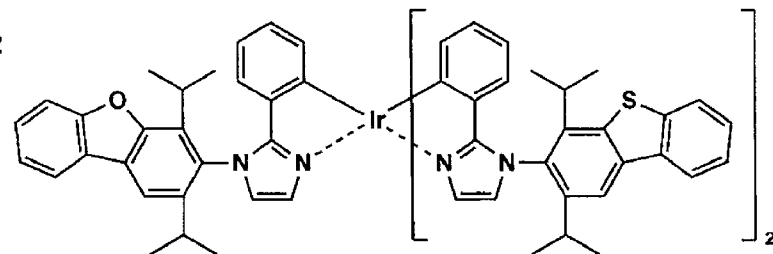
DP-30



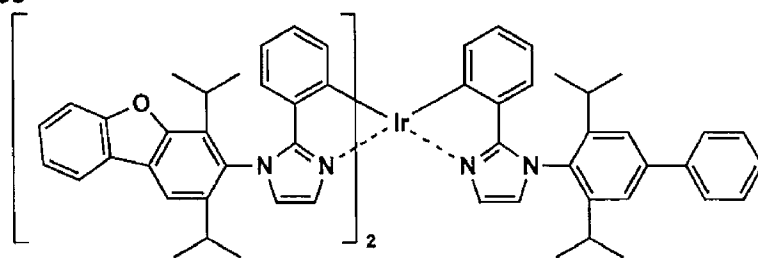
DP-31



DP-32



DP-33



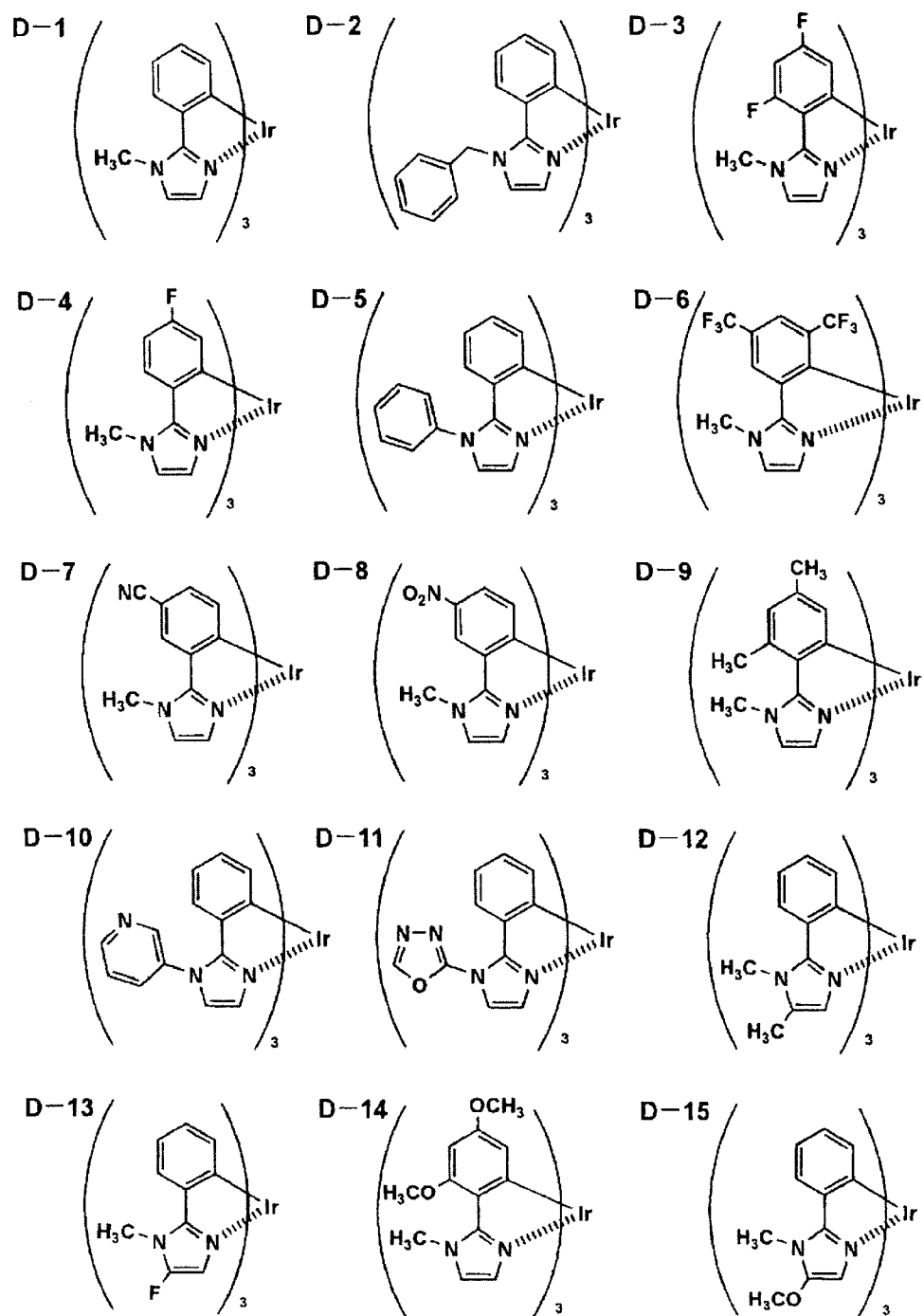
[0087] (1. 1. 2) 従来公知の発光ドーパントとの併用

本発明にかかる一般式(1)で表されるイリジウム錯体は、複数種の化合物と併用して用いてもよく、構造の異なるリン光発光ドーパントとの組み合わせや、蛍光ドーパントと組み合わせ用いてもよい。

[0088] 以下に、発光ドーパントとして、本発明にかかる一般式(1)で表されるイリジウム錯体と併用して用いてもよい従来公知の発光ドーパントの具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

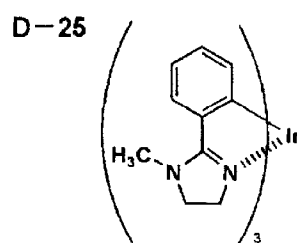
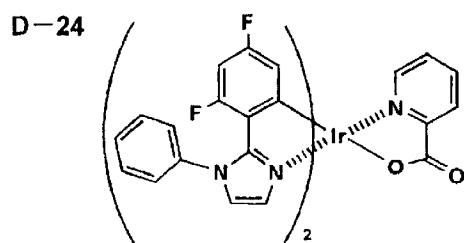
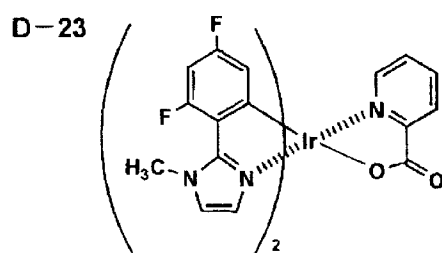
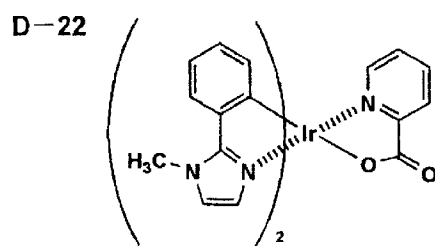
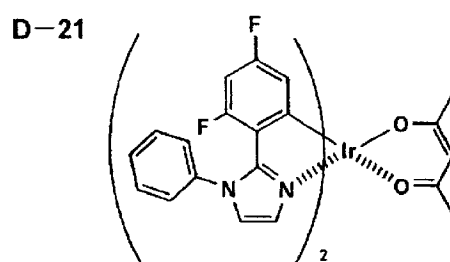
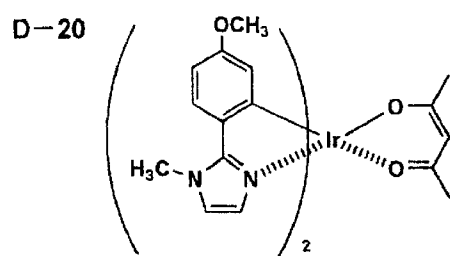
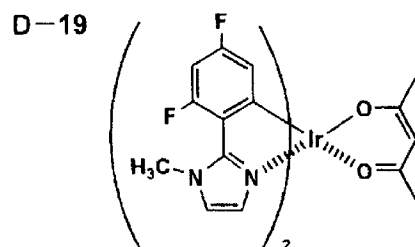
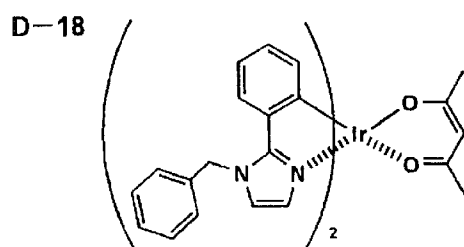
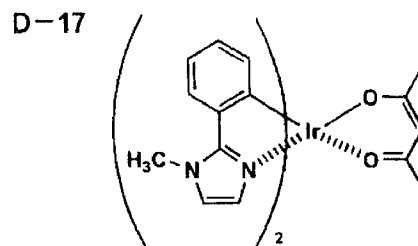
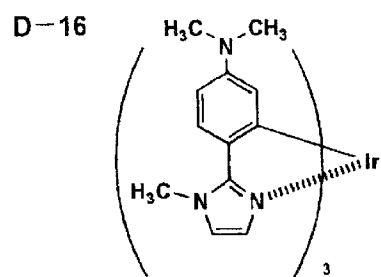
[0089]

[化15]



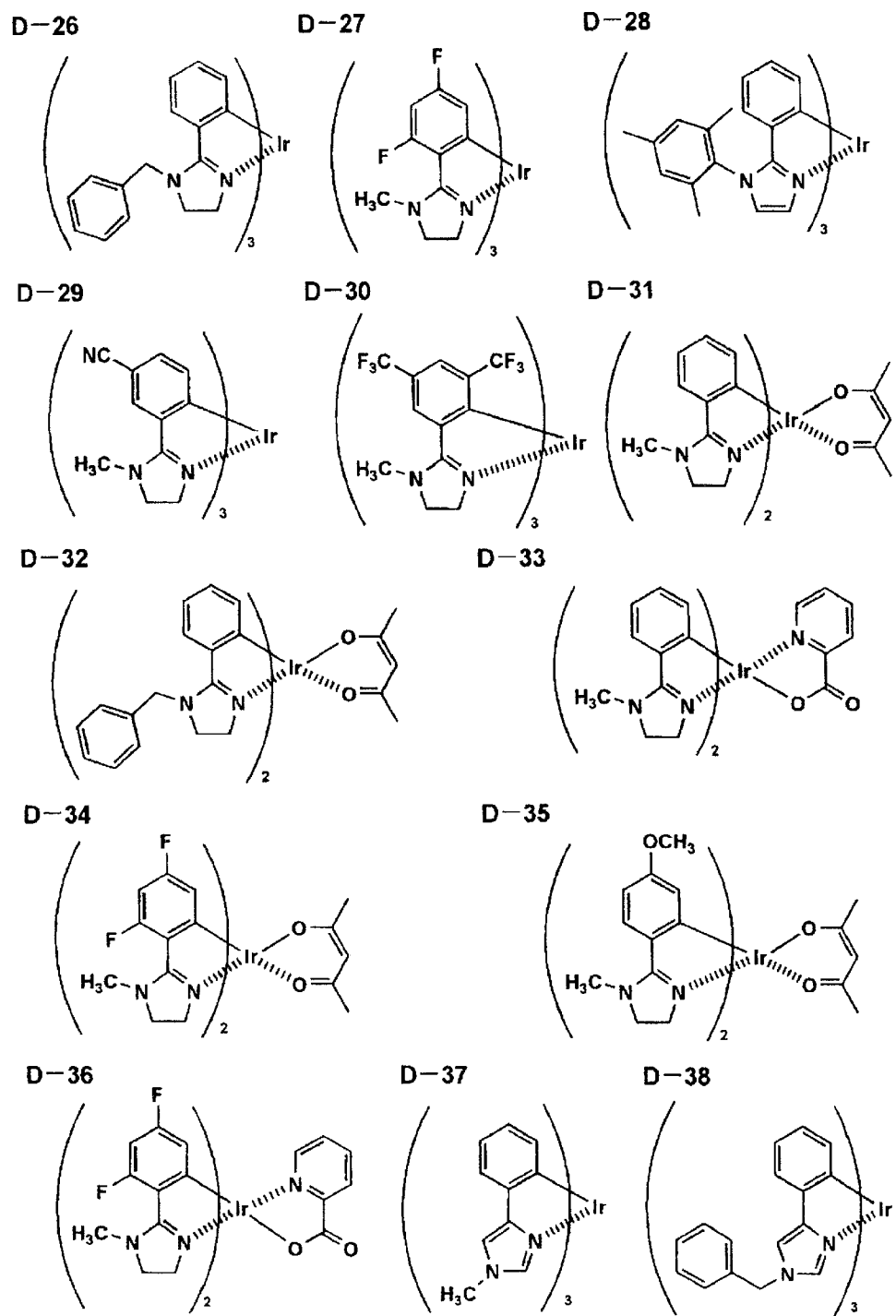
[0090]

[化16]



[0091]

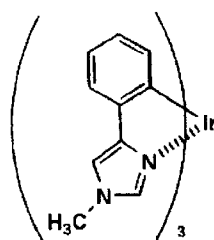
[化17]



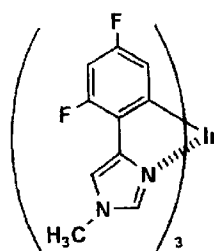
[0092]

[化18]

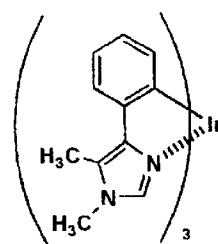
D-39



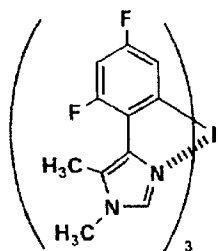
D-40



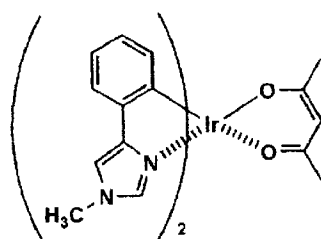
D-41



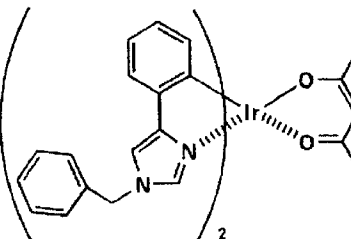
D-42



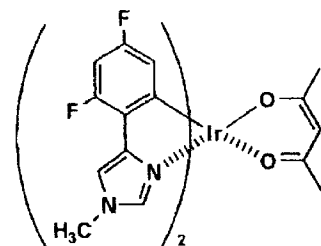
D-43



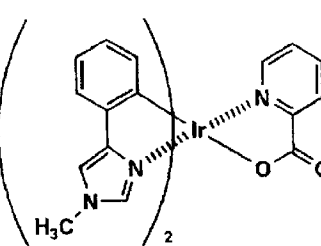
D-44



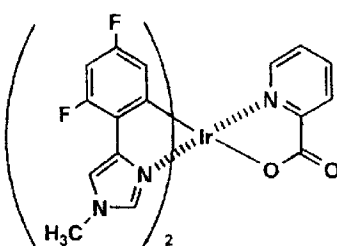
D-45



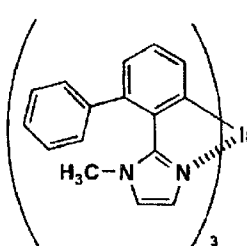
D-46



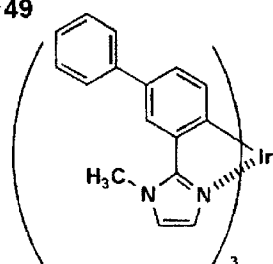
D-47



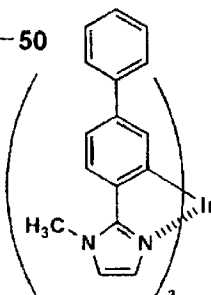
D-48



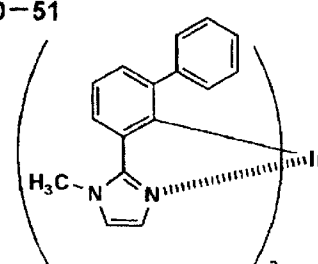
D-49



D-50



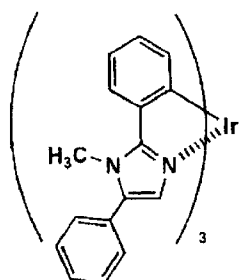
D-51



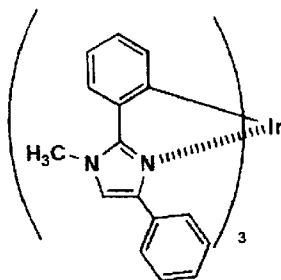
[0093]

[化19]

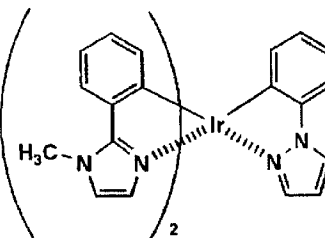
D-52



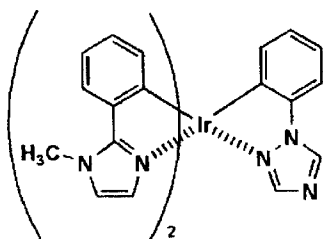
D-53



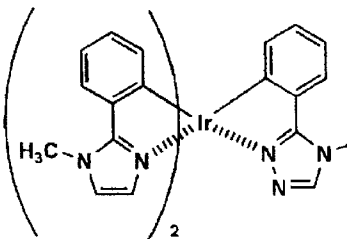
D-54



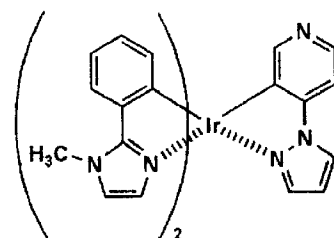
D-55



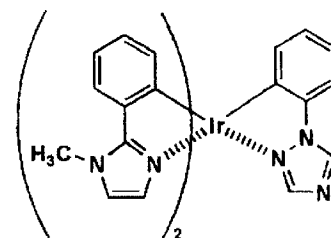
D-56



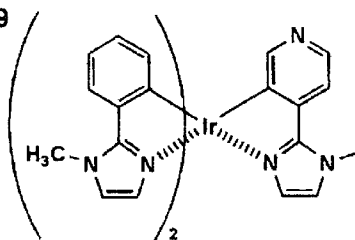
D-57



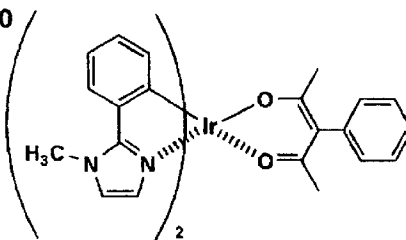
D-58



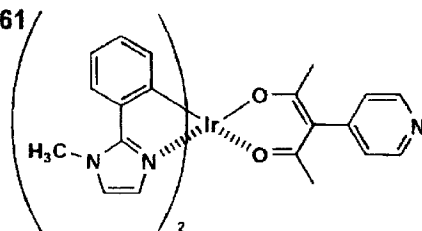
D-59



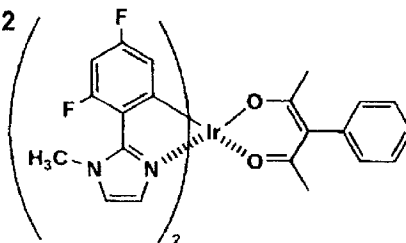
D-60



D-61



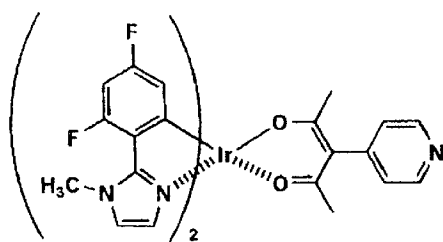
D-62



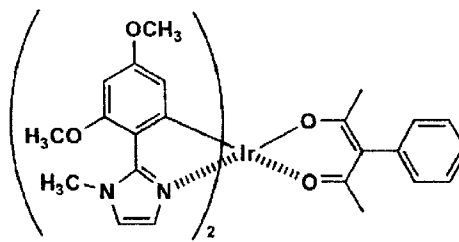
[0094]

[化20]

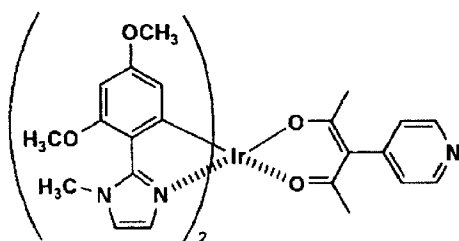
D-63



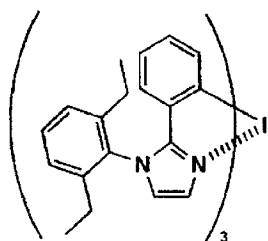
D-64



D-65



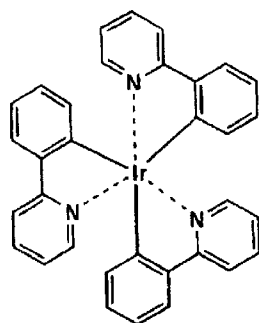
D-66



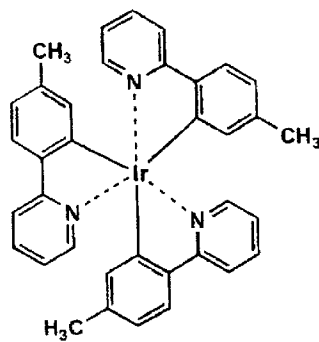
[0095]

[化21]

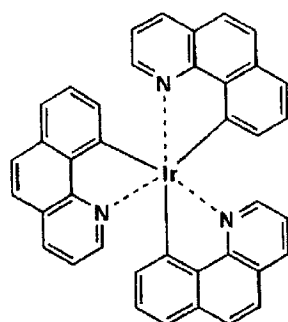
D-67



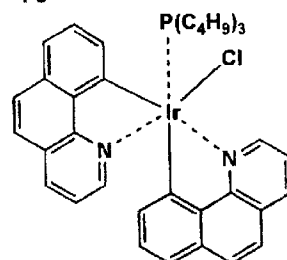
D-68



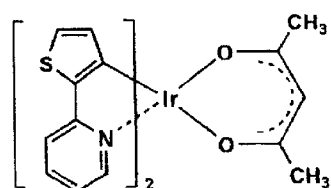
D-69



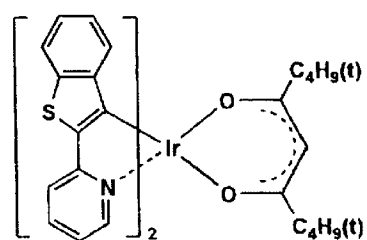
D-70



D-71



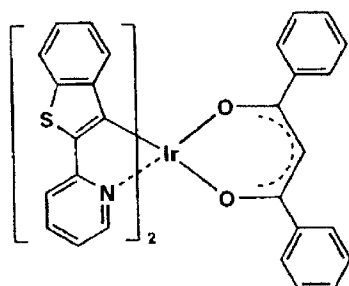
D-72



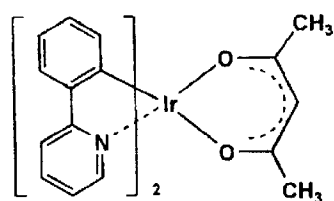
[0096]

[化22]

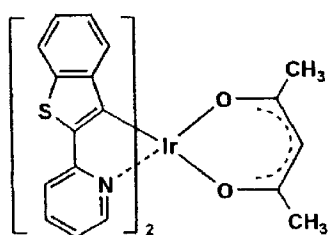
D-73



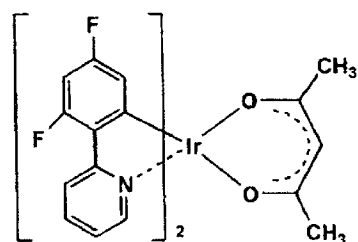
D-74



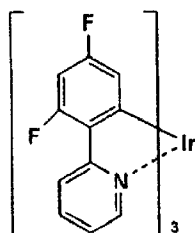
D-75



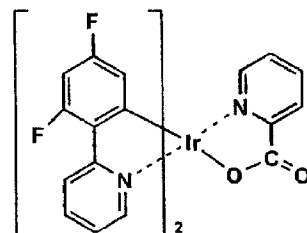
D-76



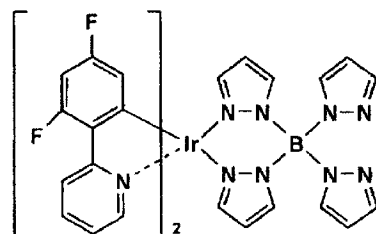
D-77



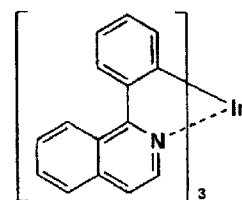
D-78



D-79

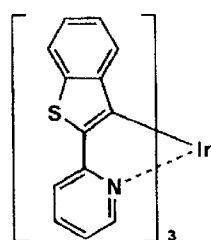


D-80

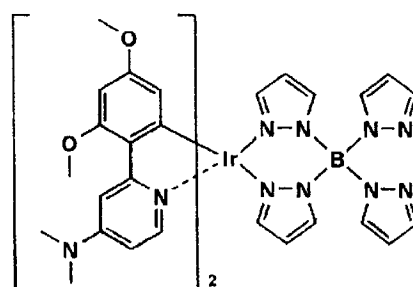


[0097] [化23]

D-81

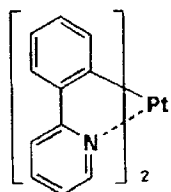


D-82

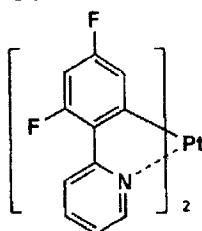


[0098] [化24]

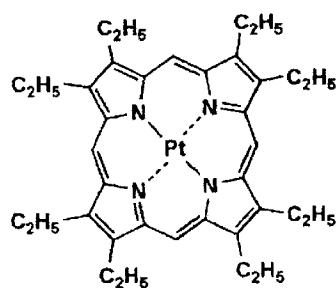
D-83



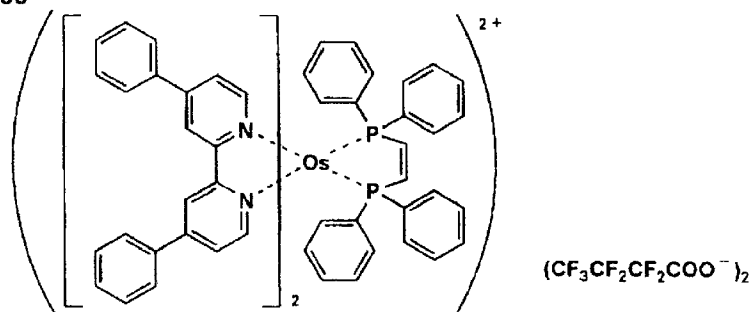
D-84



D-85



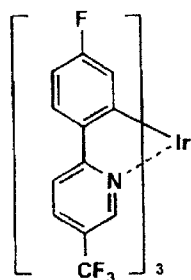
D-86



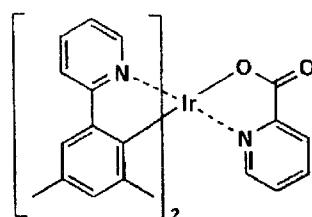
[0099]

[化25]

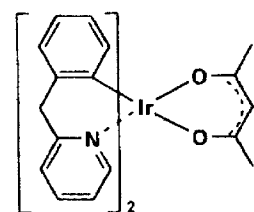
D-87



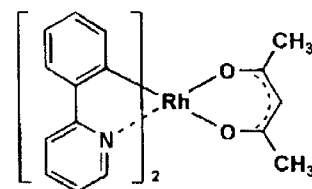
D-88



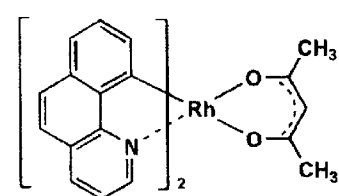
D-89



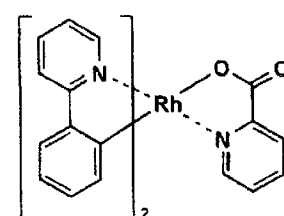
D-90



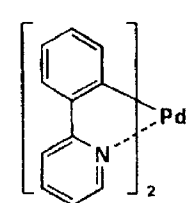
D-91



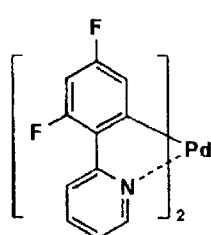
D-92



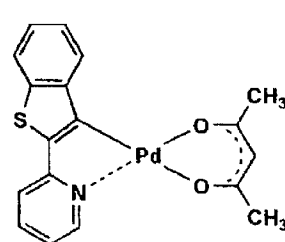
D-93



D-94

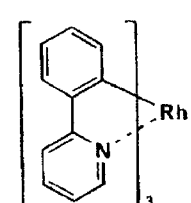


D-95

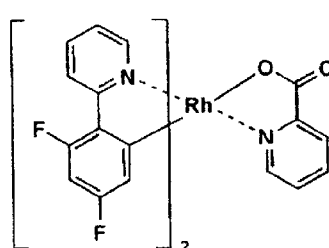


[0100] [化26]

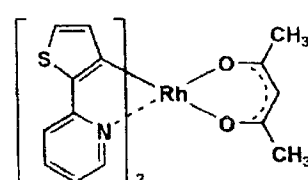
D-96



D-97

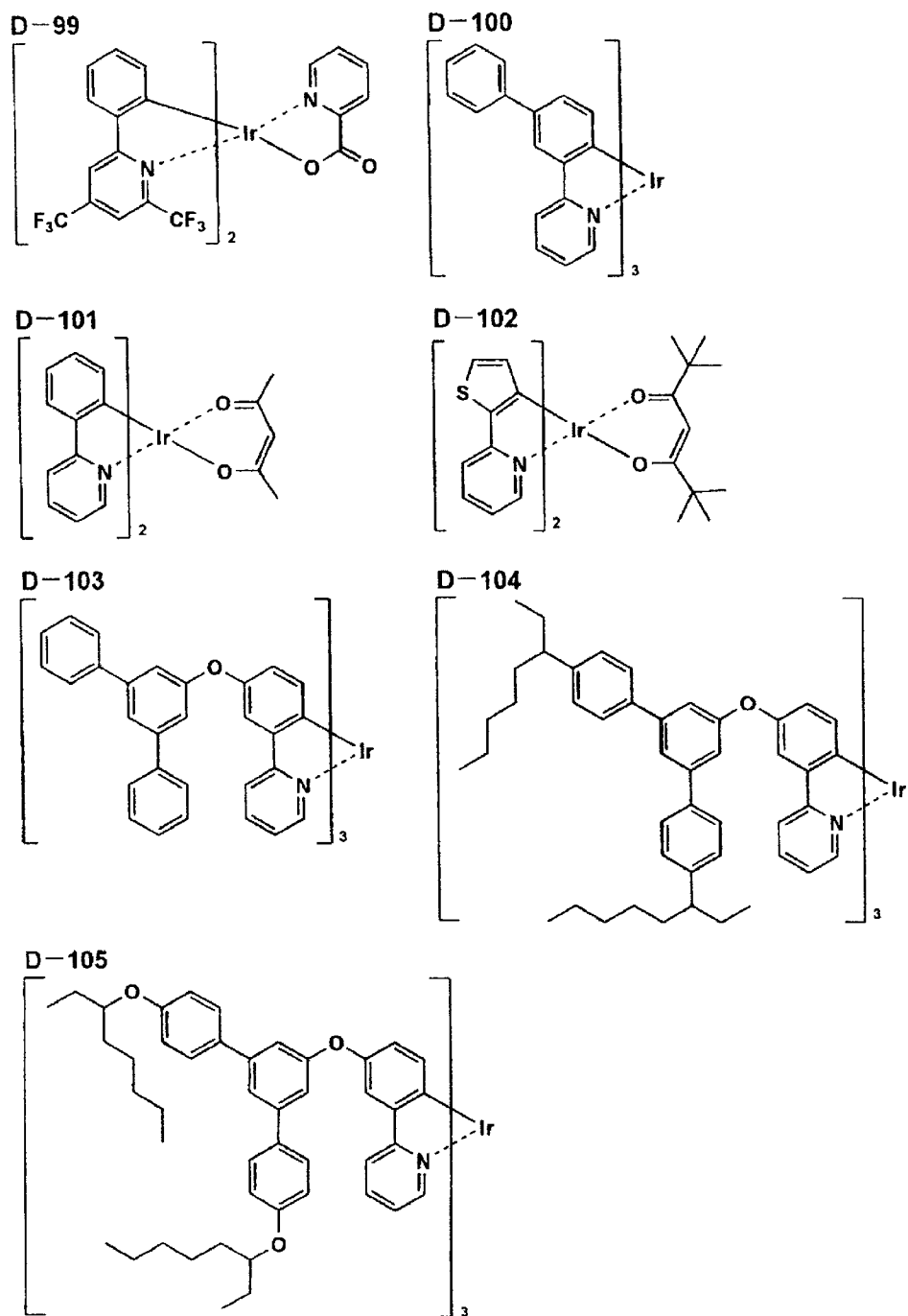


D-98



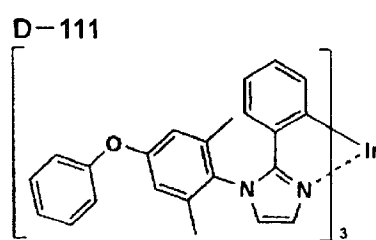
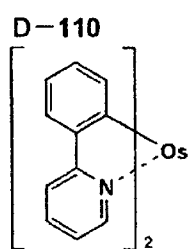
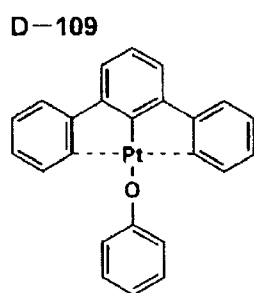
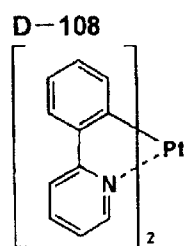
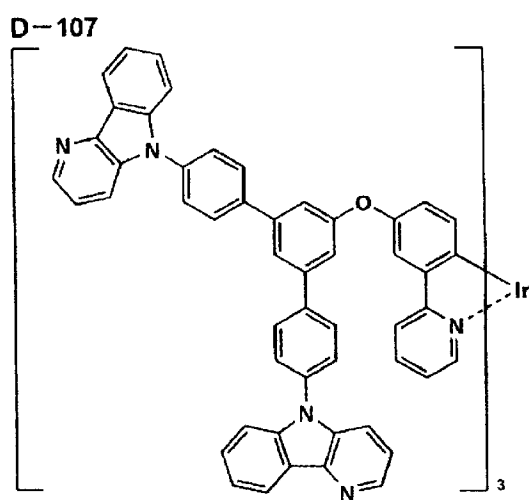
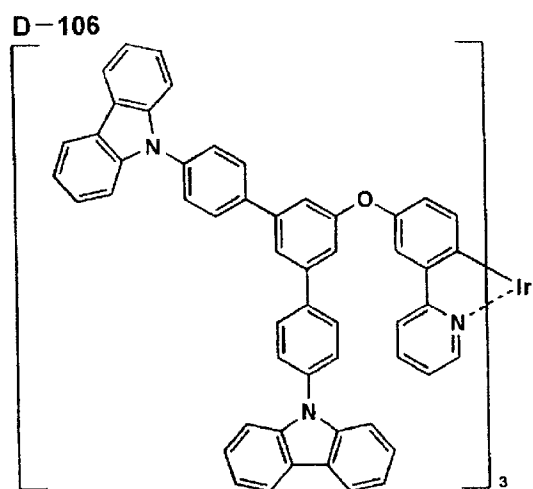
[0101]

[化27]



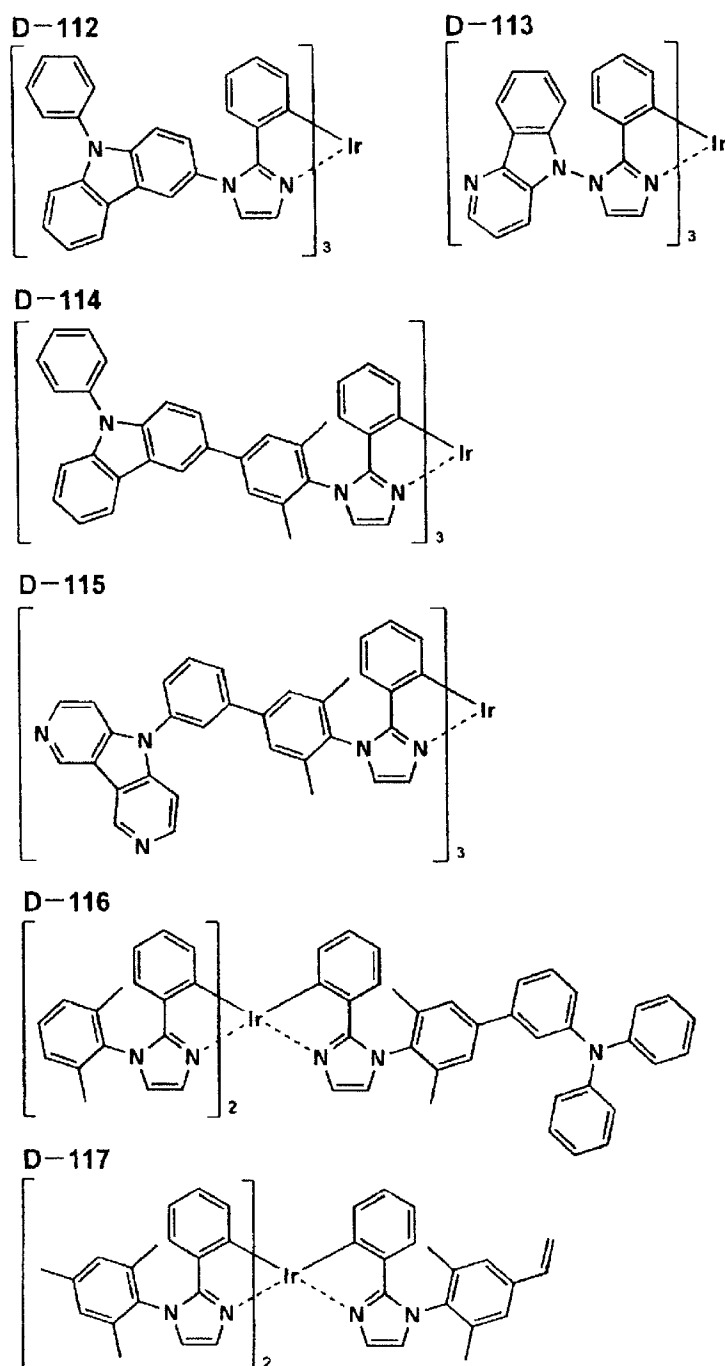
[0102]

[化28]



[0103]

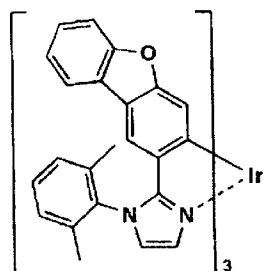
[化29]



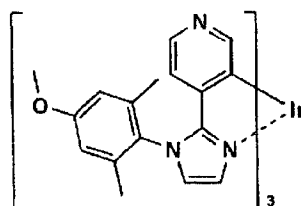
[0104]

[化30]

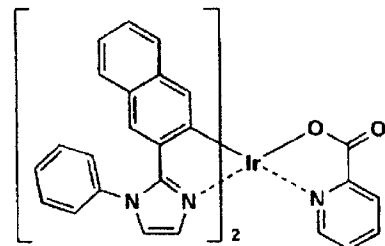
D-118



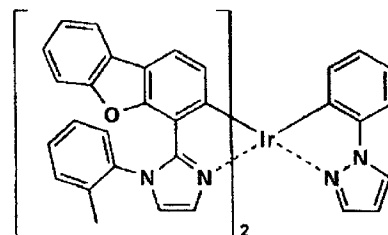
D-119



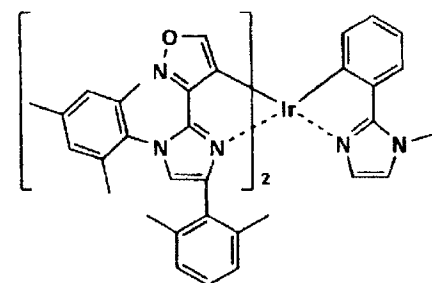
D-120



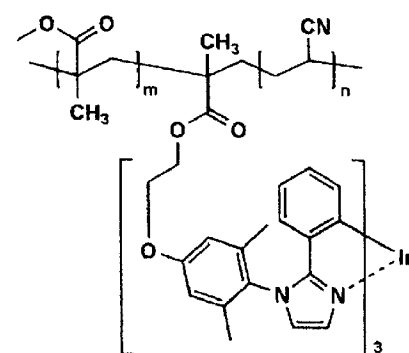
D-121



D-122



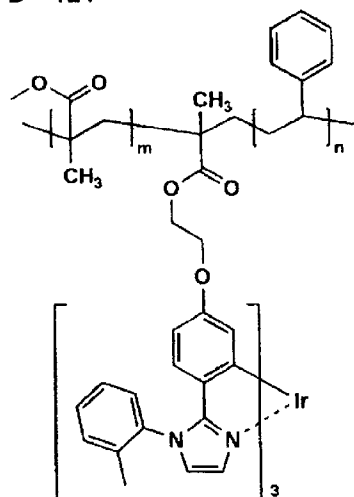
D-123



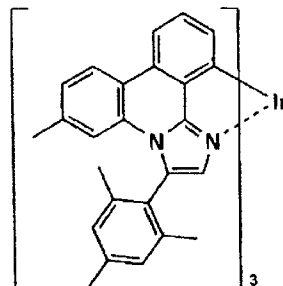
[0105]

[化31]

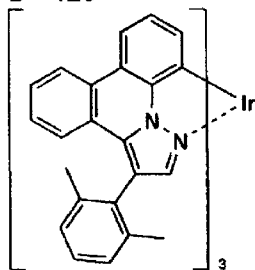
D-124



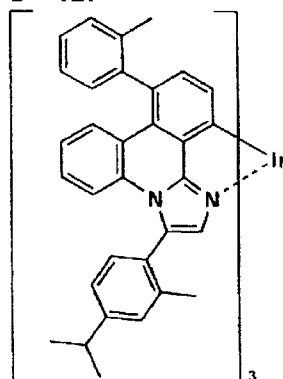
D-125



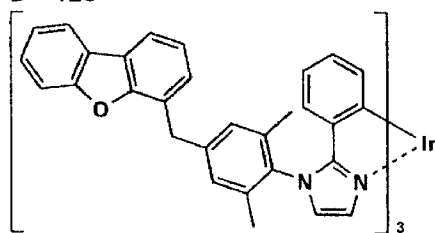
D-126



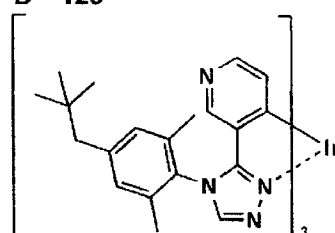
D-127



D-128



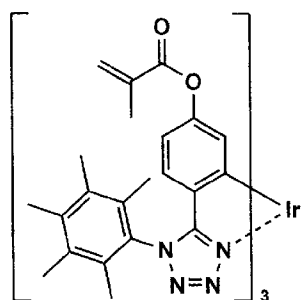
D-129



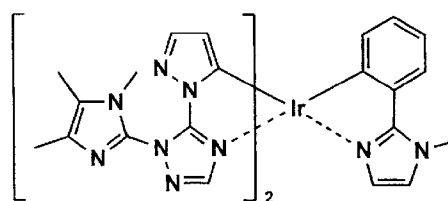
[0106]

[化32]

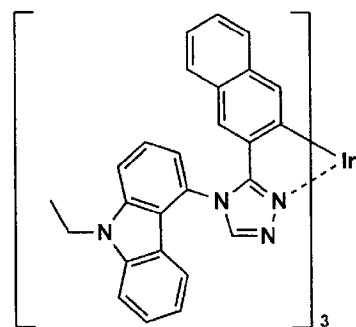
D-130



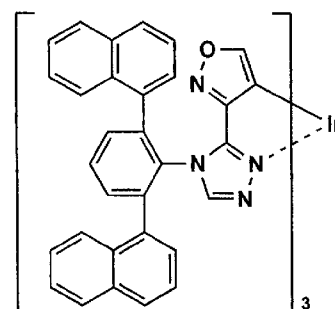
D-131



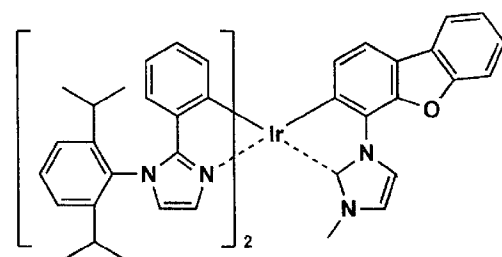
D-132



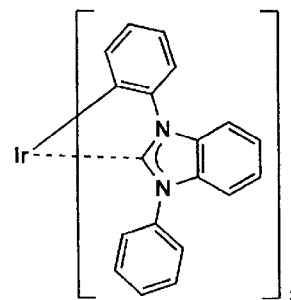
D-133



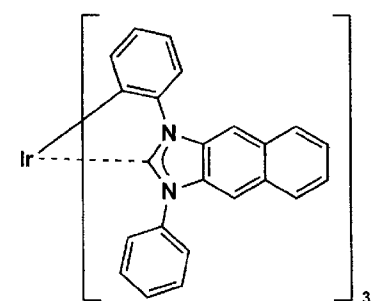
D-134



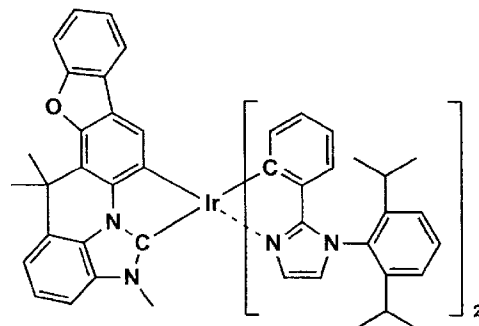
D-135



D-137



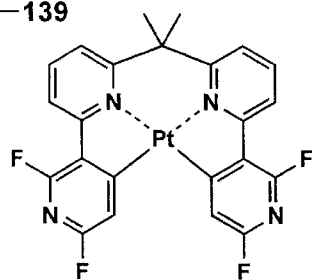
D-138



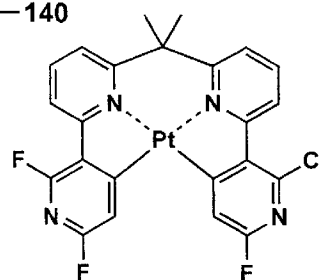
[0107]

[化33]

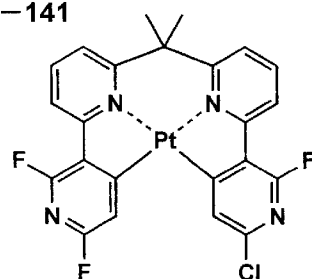
D-139



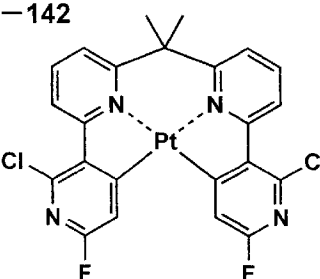
D-140



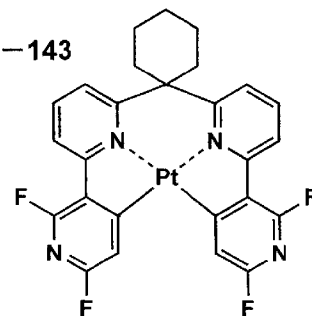
D-141



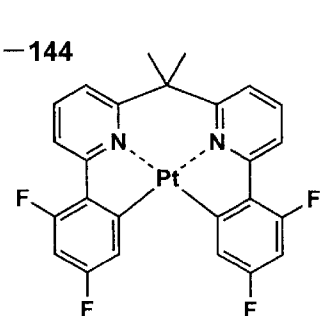
D-142



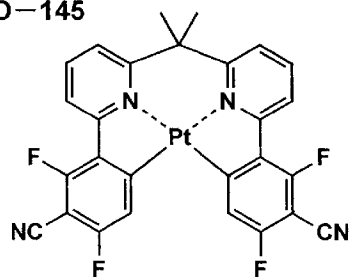
D-143



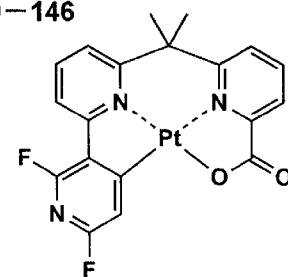
D-144



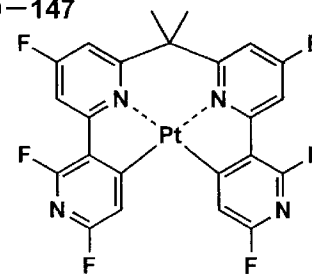
D-145



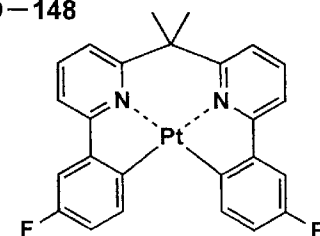
D-146



D-147



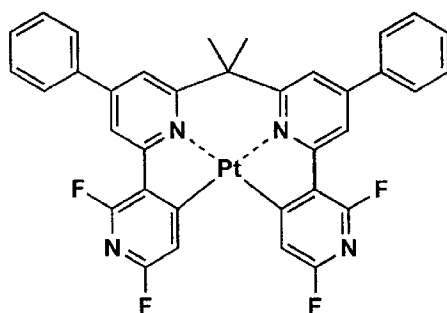
D-148



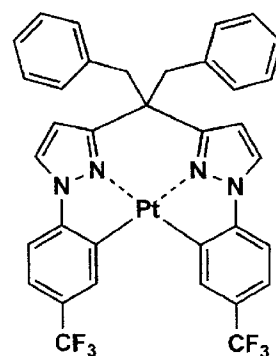
[0108]

[化34]

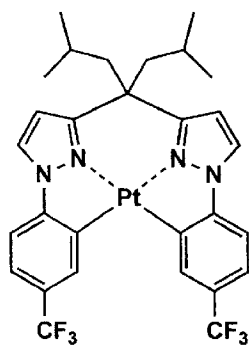
D-149



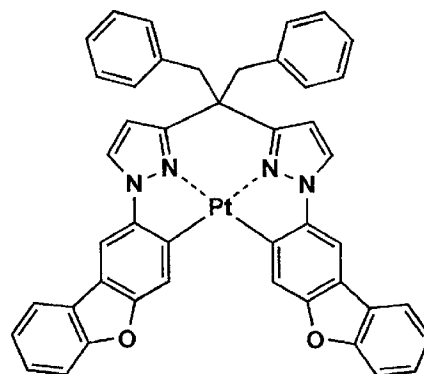
D-150



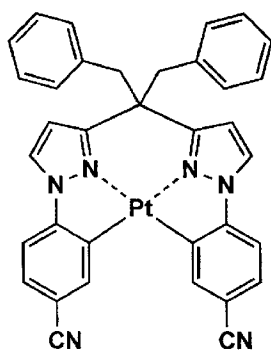
D-151



D-152



D-153



[0109] (2) ホスト化合物

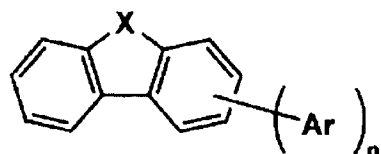
(2. 1) 一般式 (A) で表されるホスト化合物

本発明にかかるホスト化合物は、下記一般式 (A) で表される。

[0110]

[化35]

一般式 (A)



[0111] 一般式 (A) 中、「X」は NR' 、O、S、 $\text{CR}'\text{R}''$ または $\text{SiR}'\text{R}''$ を表す。 R' および R'' は各々水素原子または置換基を表す。「Ar」は芳香環を表す。 n は 0～8 の整数を表す。

[0112] 一般式 (A) における「X」において、 R' 、 R'' で各々表される置換基としては、アルキル基（たとえば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 t -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（たとえば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（たとえば、ビニル基、アリル基等）、アルキニル基（たとえば、エチニル基、プロパルギル基等）、芳香族炭化水素環基（芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、たとえば、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、ビフェニル基等）、芳香族複素環基（たとえば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基（たとえば、1, 2, 4-トリアゾール-1-イル基、1, 2, 3-トリアゾール-1-イル基等）、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基

、キナゾリニル基、フタラジニル基等)、複素環基(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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(たとえば、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-ピリジルアミノ基等)、ハロゲン原子(たとえば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(たとえば、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(たとえば、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)等が挙げられる。これらの置換基は上記の置換基によってさらに置換されていてもよい。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。

- [0113] 中でも、「X」としてはNR' またはOが好ましく、また、R' としては、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、たとえば、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）、または芳香族複素環基（たとえば、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、フタラジニル基等）が特に好ましい。

上記の芳香族炭化水素基、芳香族複素環基は、各々一般式(A)の「X」において、R'、R''で各々表される置換基を有してもよい。

- [0114] 一般式(A)において、「Ar」により表される芳香環としては、芳香族炭化水素環または芳香族複素環が挙げられる。また、芳香環は単環でもよく、縮合環でもよく、さらに未置換でも、一般式(A)の「X」において、R'、R''で各々表される置換基を有してもよい。

- [0115] 一般式(A)において、「Ar」により表さ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。これらの環はさらに、一般式(A)で表される部分構造の「X」において、R'、R''で各々表される置換基を有してもよい。

- [0116] 一般式(A)において、「Ar」により表される芳香族複素環としては、

たとえば、フラン環、ジベンゾフラン環、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化水素環の炭素原子の一つがさらに窒素原子で置換されている環を示す）等が挙げられる。

これらの環は、さらに一般式（A）において、R'、R''で各々表される置換基を有してもよい。

[0117] 上記の中でも、一般式（A）において、「Ar」により表される芳香環として、好ましく用いられるのは、カルバゾール環、カルボリン環、ジベンゾフラン環、ベンゼン環であり、さらに好ましく用いられるのは、カルバゾール環、カルボリン環、ベンゼン環であり、より好ましくは置換基を有するベンゼン環であり、特に好ましくはカルバゾリル基を有するベンゼン環が挙げられる。

[0118] また、一般式（A）において、「Ar」により表される芳香環としては、各々3環以上の縮合環が好ましい一態様であり、3環以上が縮合した芳香族炭化水素縮合環としては、具体的には、ナфтаセン環、アントラセン環、テトラセン環、ペンタセン環、ヘキサセン環、フェナントレン環、ピレン環、ベンゾピレン環、ベンゾアズレン環、クリセン環、ベンゾクリセン環、アセナフテン環、アセナフチレン環、トリフェニレン環、コロネン環、ベンゾコロネン環、ヘキサベンゾコロネン環、フルオレン環、ベンゾフルオレン環、フルオランテン環、ペリレン環、ナフトペリレン環、ペンタベンゾペリレン環、ベンゾペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピラントレン環、コロネン環、ナフトコロネン環、オバレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。なお、これらの環は、さらに上記の置換基を有していてもよい。

[0119] また、3環以上が縮合した芳香族複素環としては、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、カルボリン環、フェナジン環、フェナントリジン環、フェナントロリン環、カルボリン環、サイクラジン環、キンドリン環、テペニジン環、キニンドリン環、トリフェノジチアジン環、トリフェノジオキサジン環、フェナントラジン環、アントラジン環、ペリミジン環、ジアザカルバゾール環（カルボリン環を構成する炭素原子の任意の一つが窒素原子で置き換わったものを表す。）、フェナントロリン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、ナフトフラン環、ナフトチオフェン環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフェン環、ナフトジフラン環、ナフトジチオフェン環、アントラフラン環、アントラジフラン環、アントラチオフェン環、アントラジチオフェン環、チアントレン環、フェノキサチイン環、チオファントレン環（ナフトチオフェン環）等が挙げられる。なお、これらの環はさらに置換基を有していてもよい。

[0120] また、一般式（A）において、 n は0～8の整数を表すが、0～2であることが好ましく、特に「X」がO、Sである場合には1～2であることが好ましい。

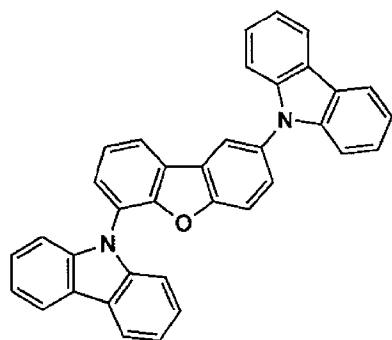
[0121] 本発明においては、特に、ジベンゾフラン環とカルバゾール環とをともに有する低分子化合物が好ましい。

[0122] 以下に、本発明で用いることのできる一般式（A）で表されるホスト化合物の具体的な化合物を例示する。ただし、本発明はこれらに限定されるものではない。

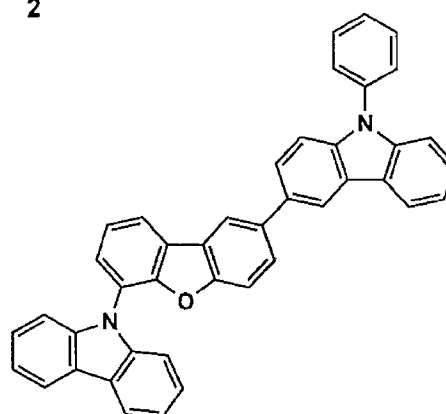
[0123]

[化36]

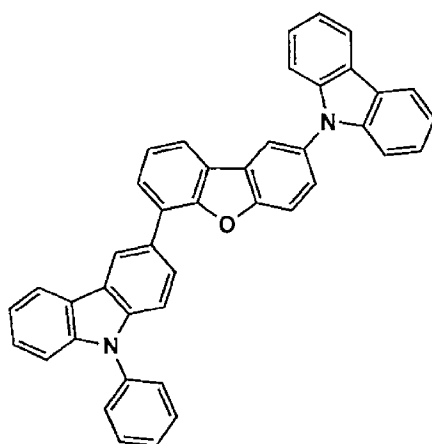
1



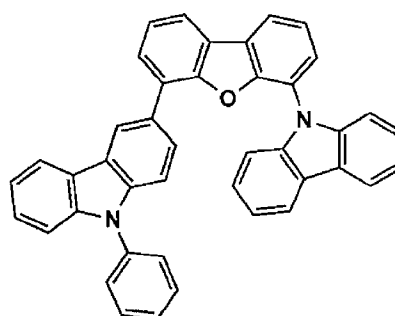
2



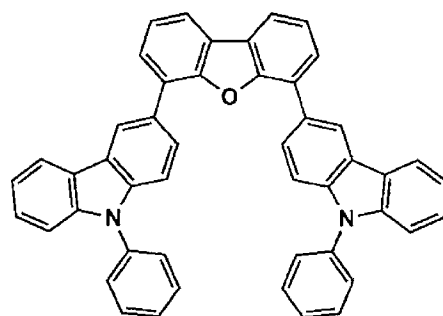
3



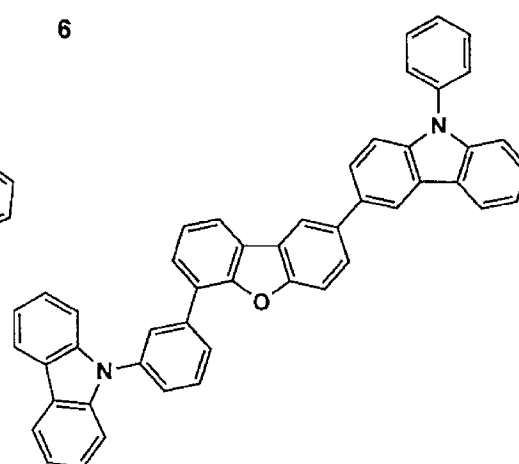
4



5



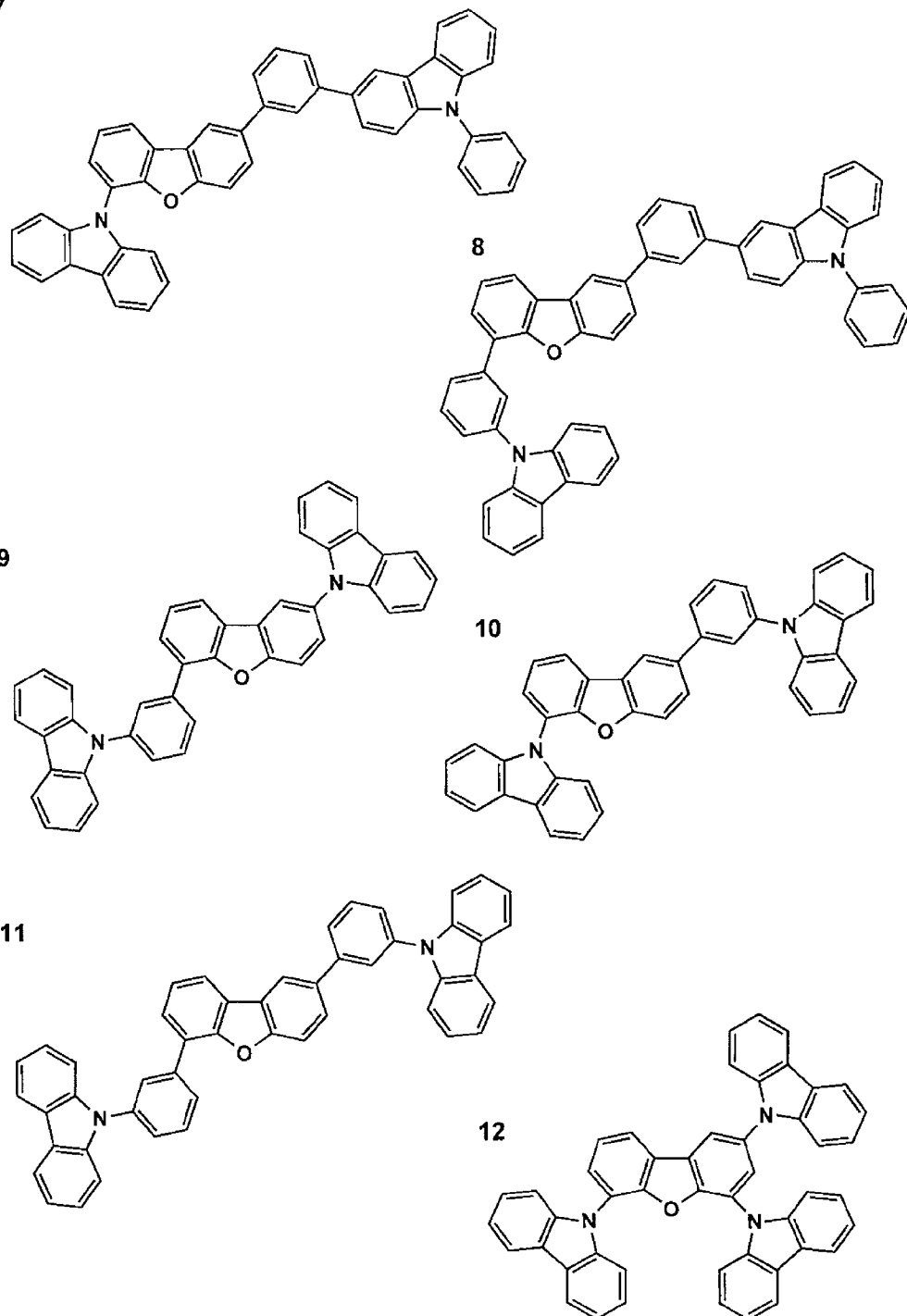
6



[0124]

[化37]

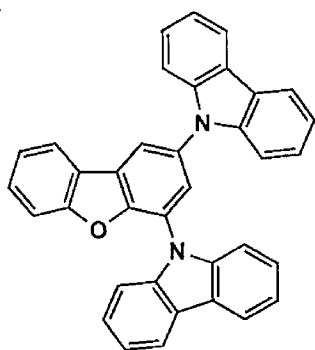
7



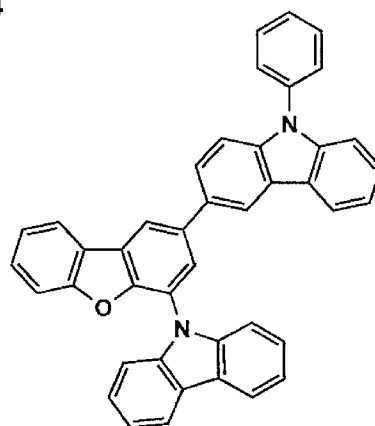
[0125]

[化38]

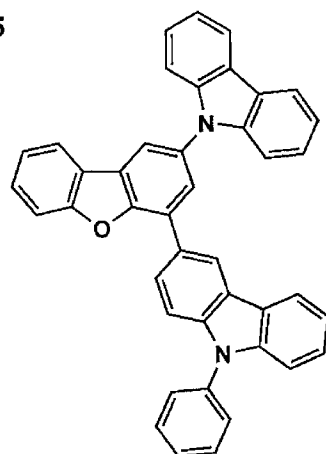
13



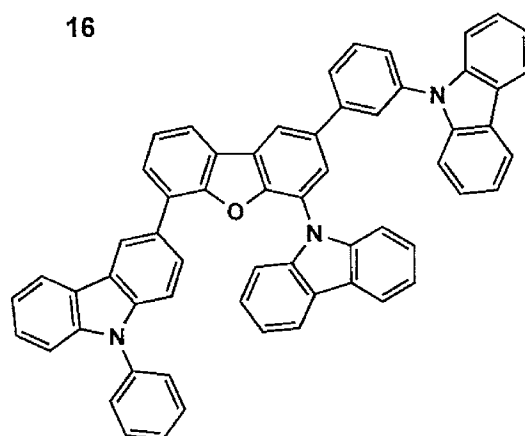
14



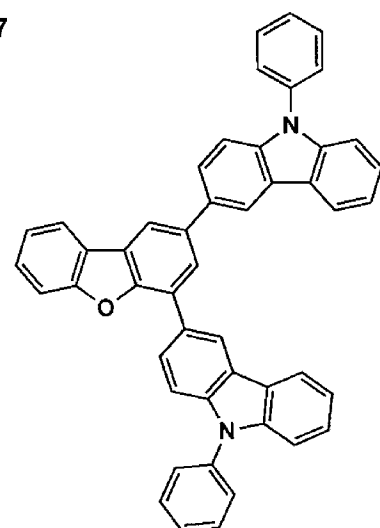
15



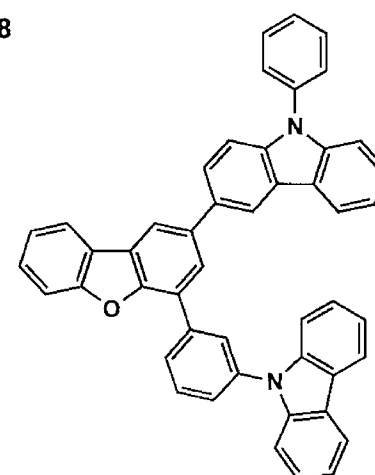
16



17



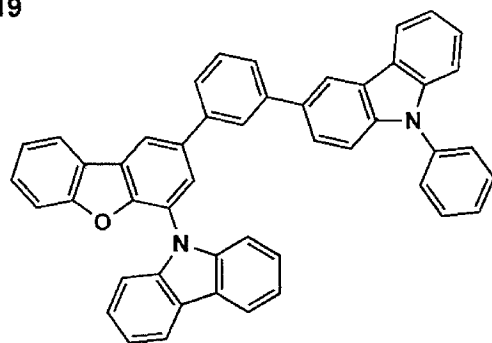
18



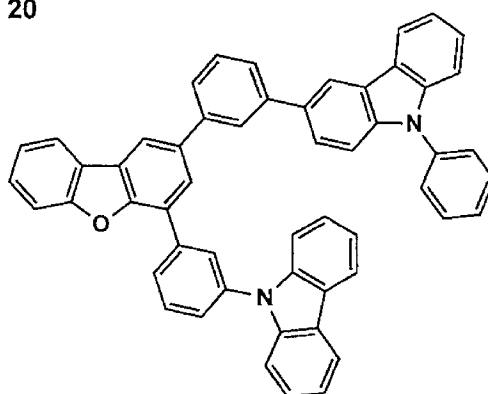
[0126]

[化39]

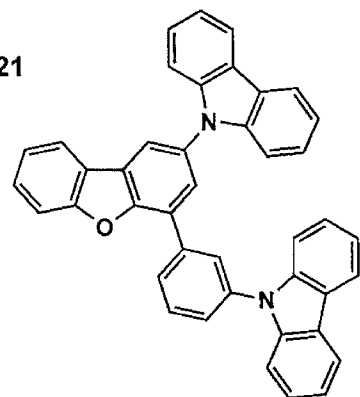
19



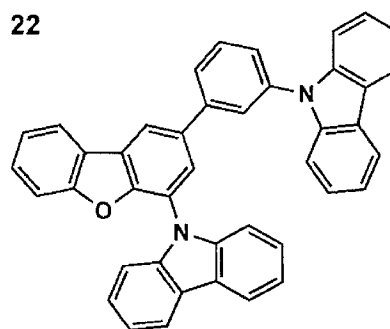
20



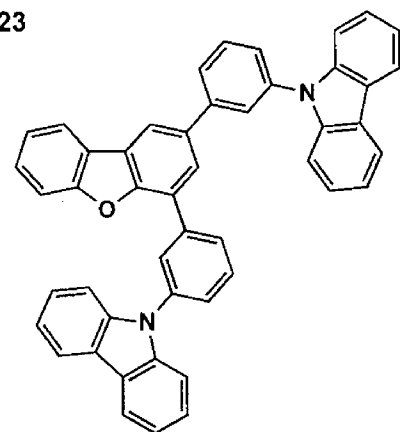
21



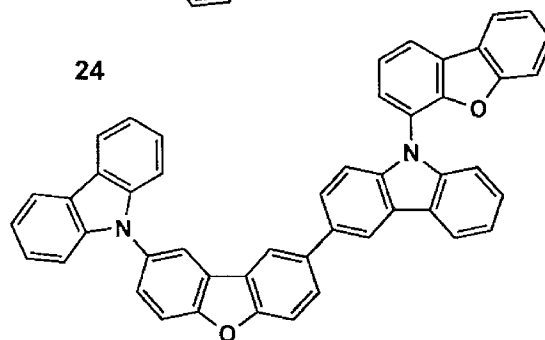
22



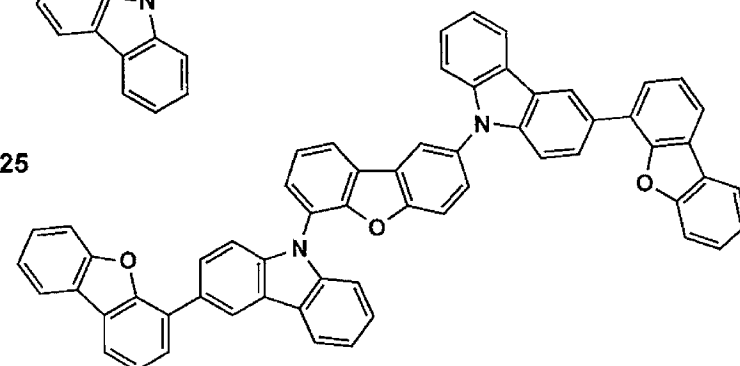
23



24



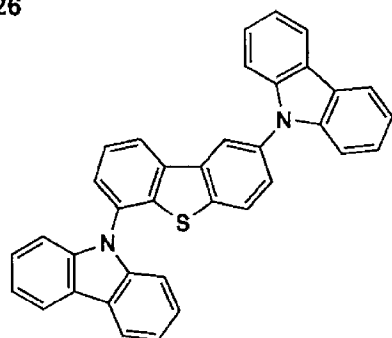
25



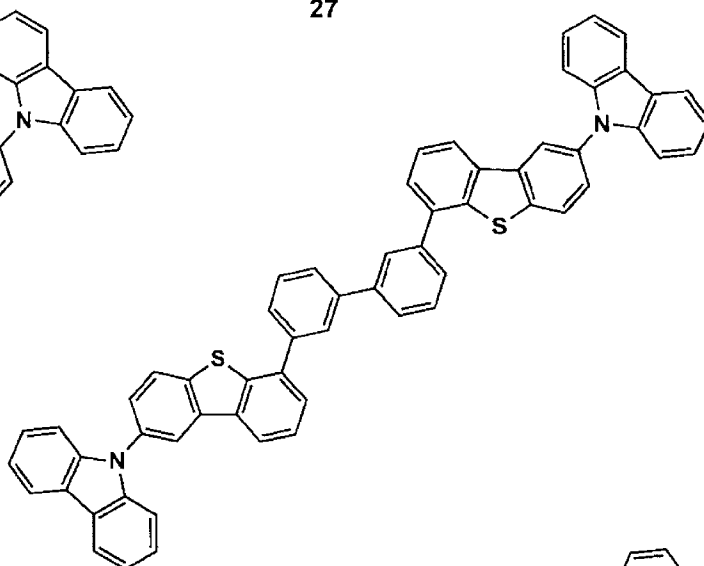
[0127]

[化40]

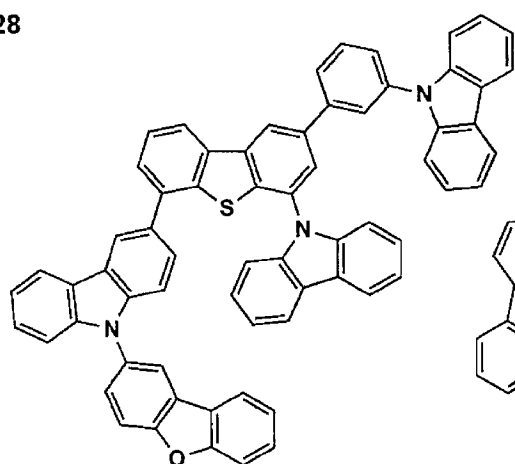
26



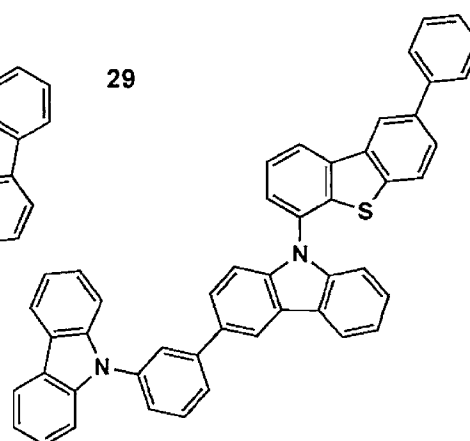
27



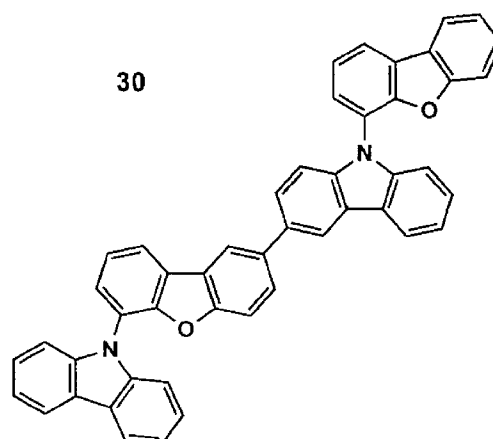
28



29



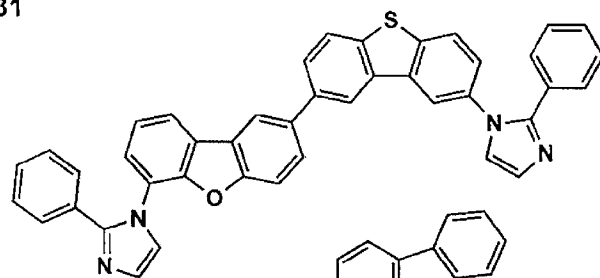
30



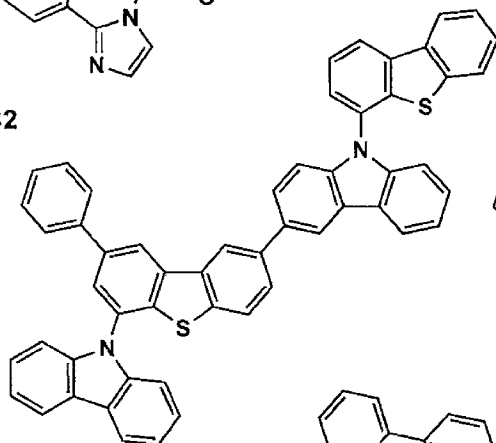
[0128]

[化41]

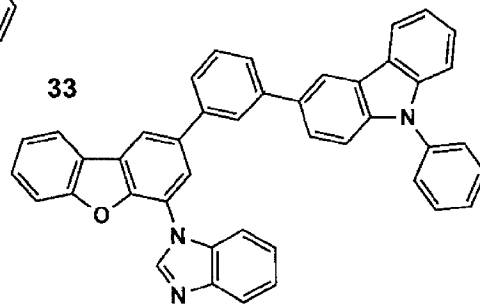
31



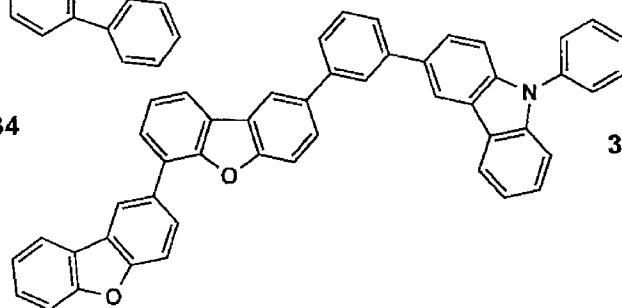
32



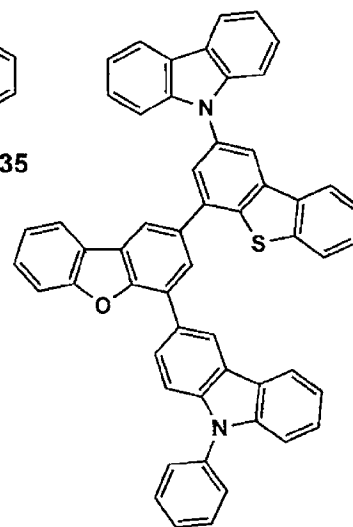
33



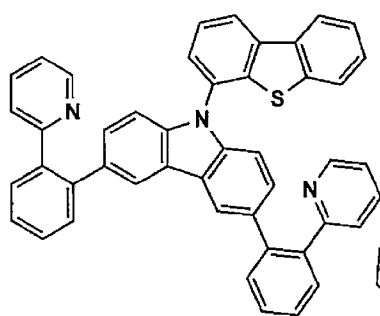
34



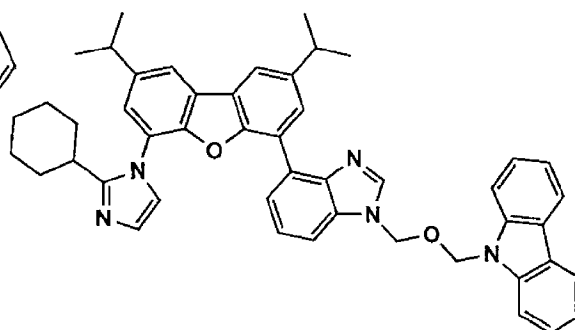
35



36



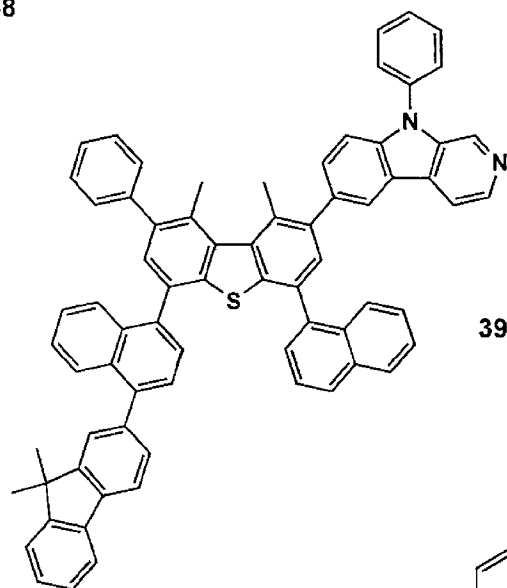
37



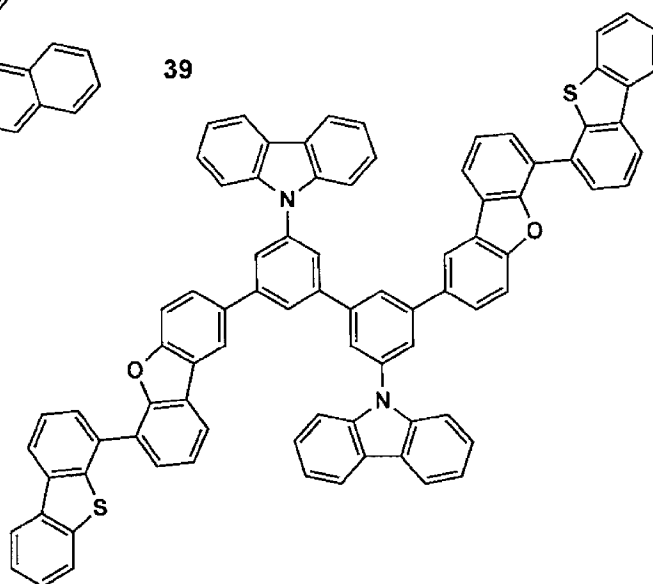
[0129]

[化42]

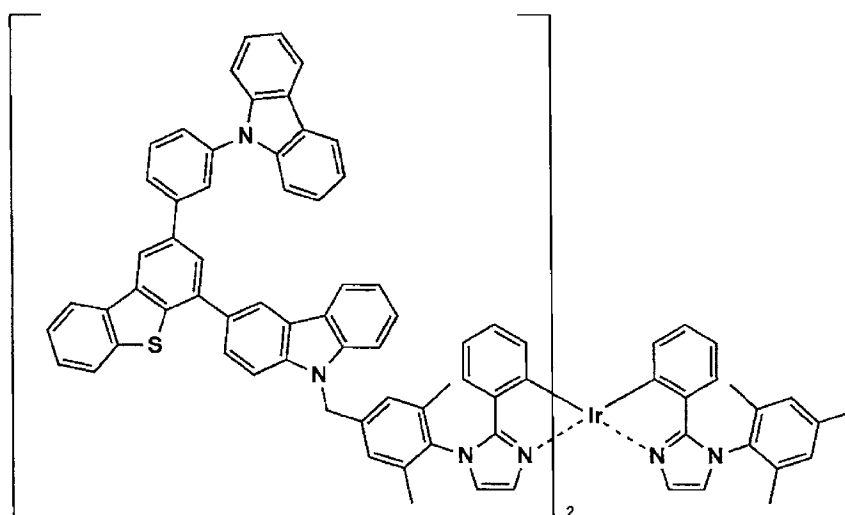
38



39

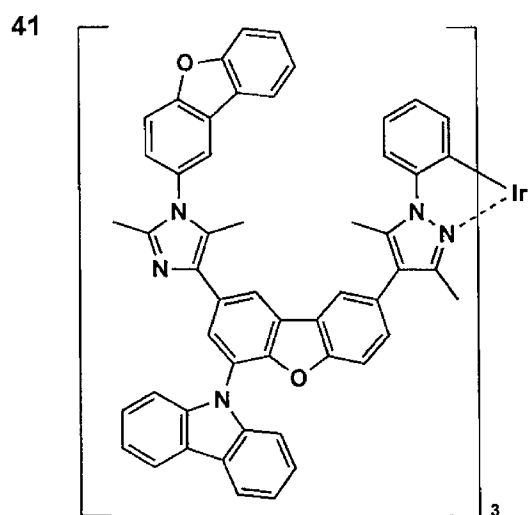


40

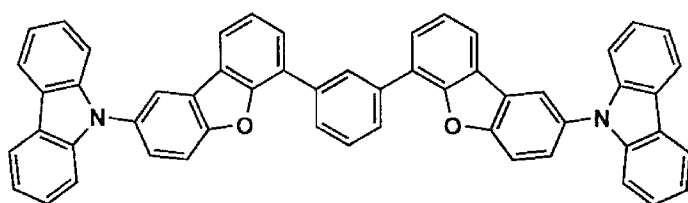


[0130]

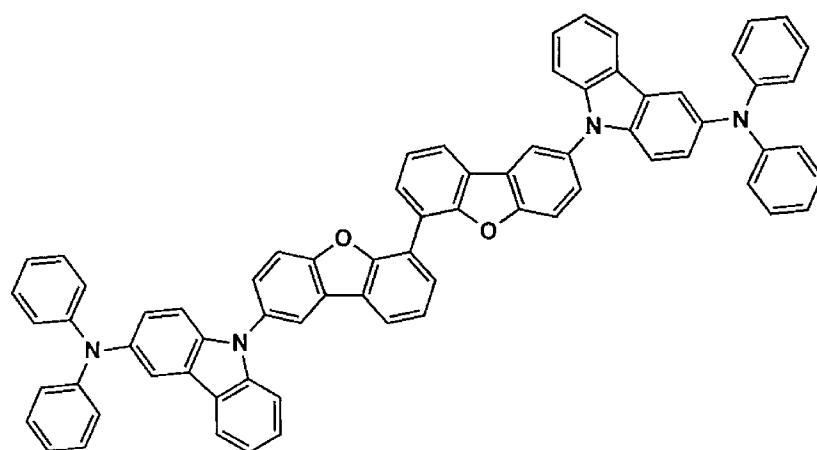
[化43]



42



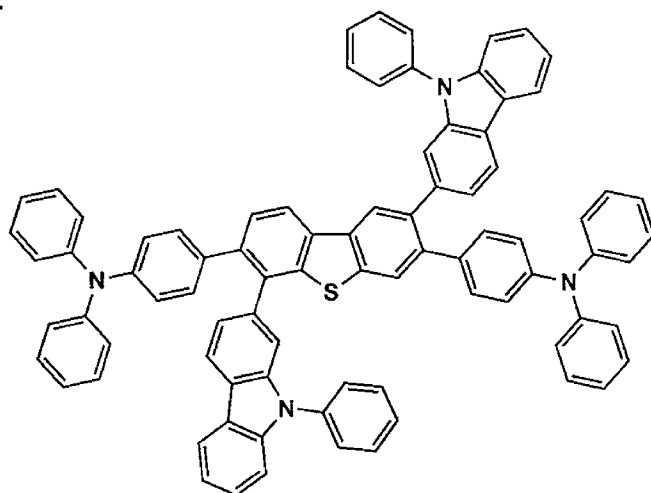
43



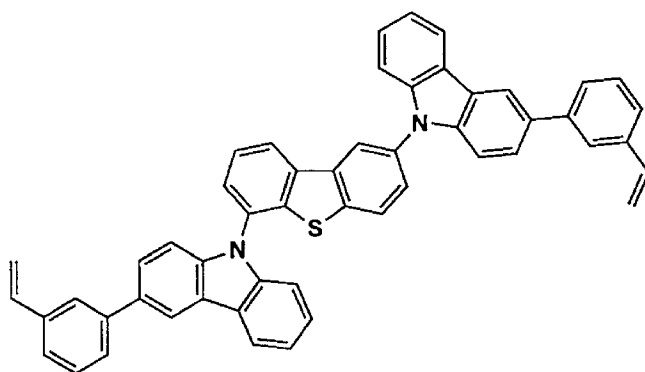
[0131]

[化44]

44

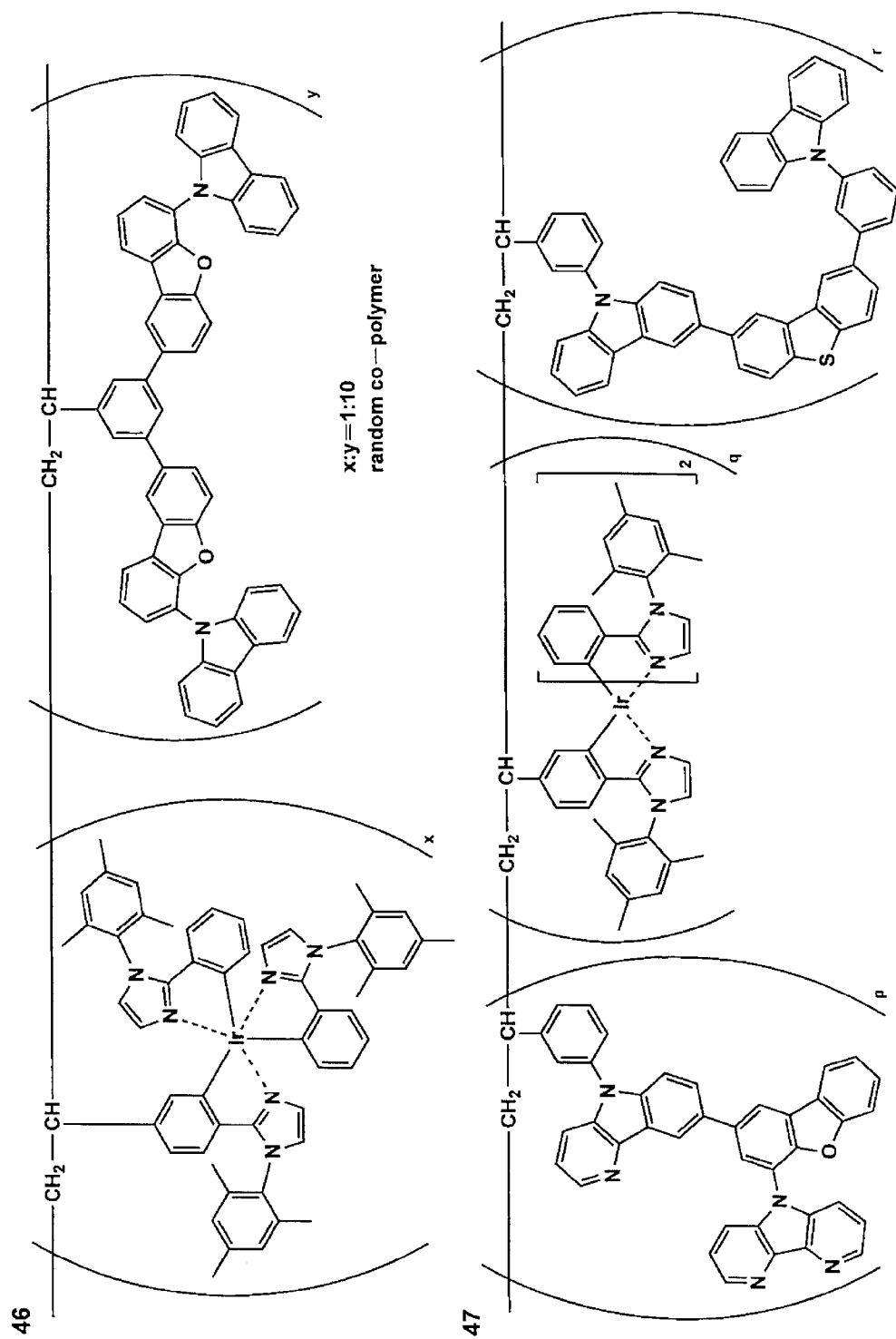


45



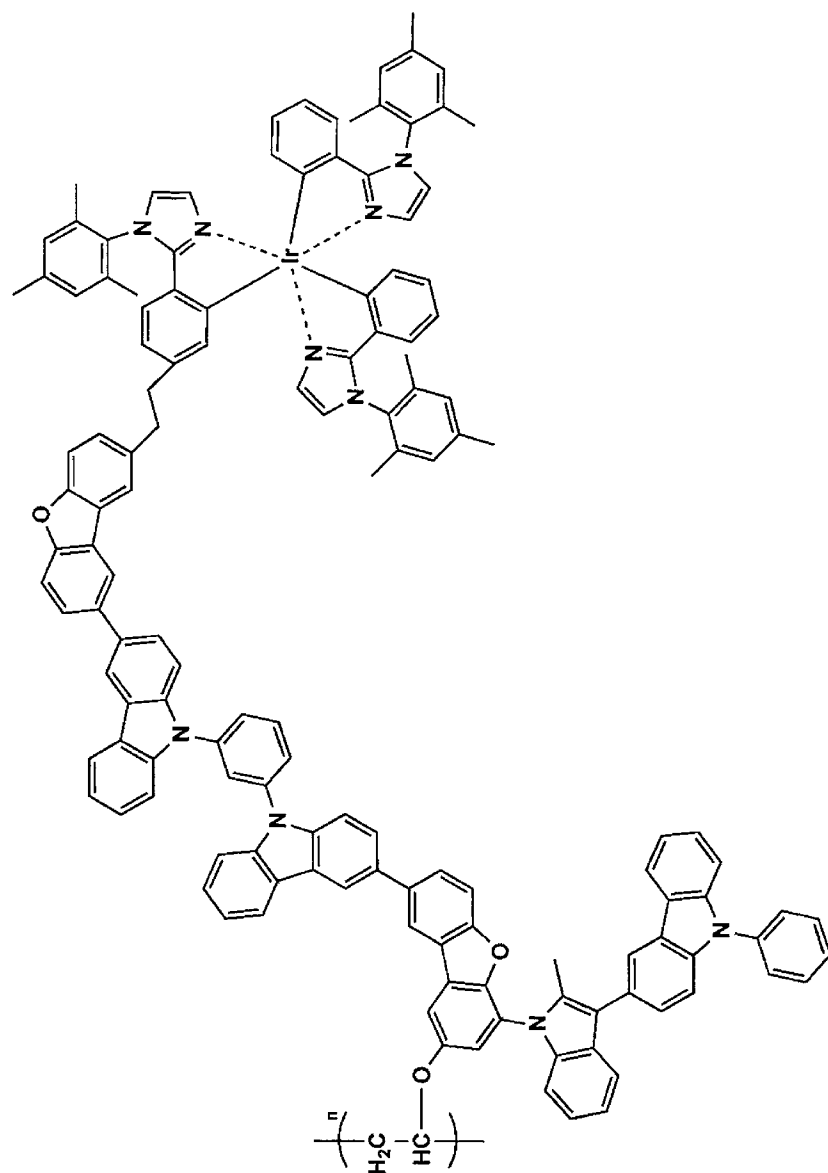
[0132]

[化45]



[0133]

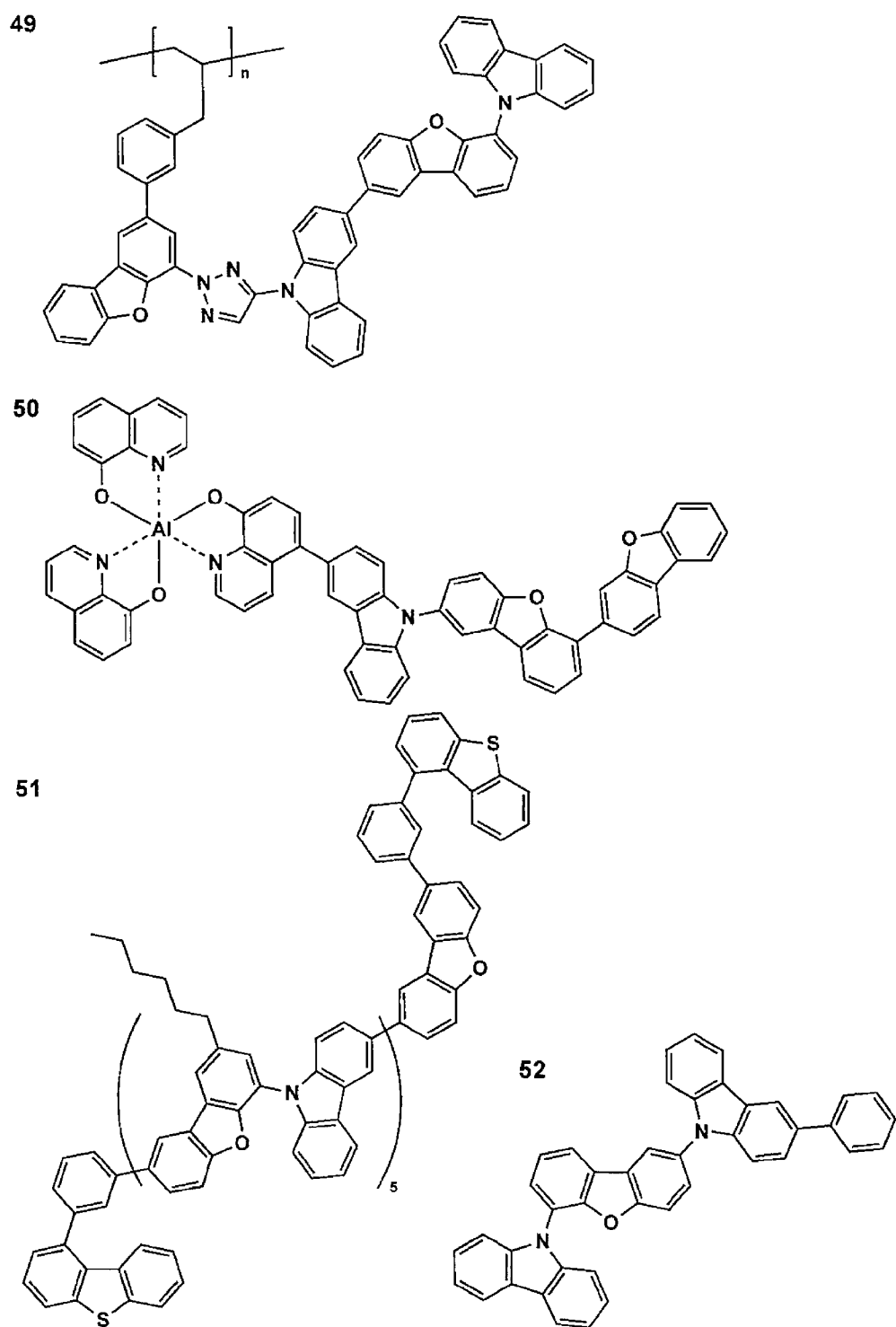
[化46]



48

[0134]

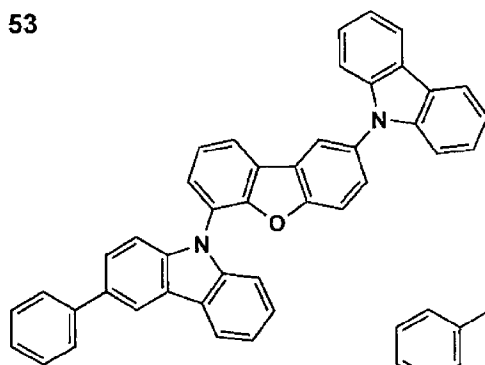
[化47]



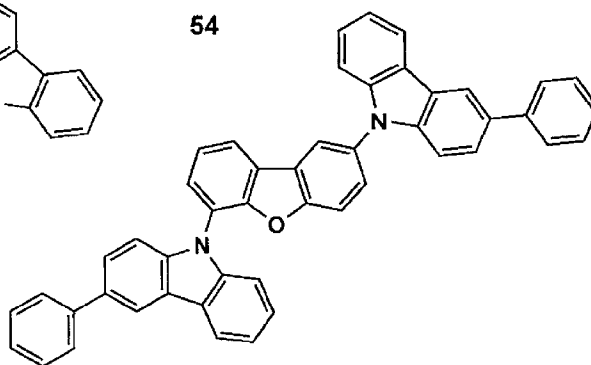
[0135]

[化48]

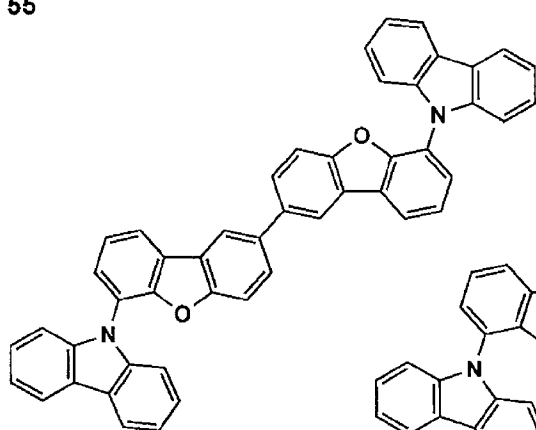
53



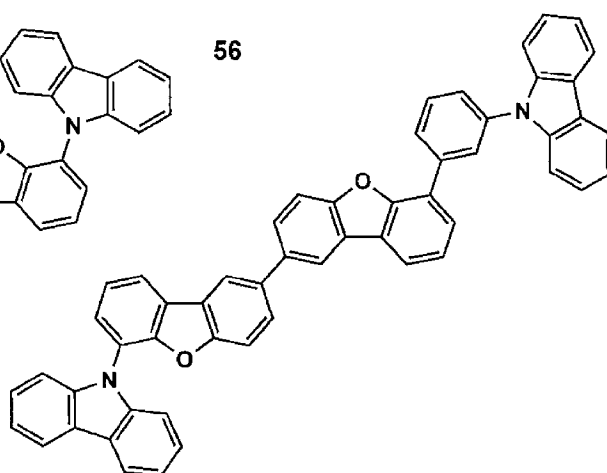
54



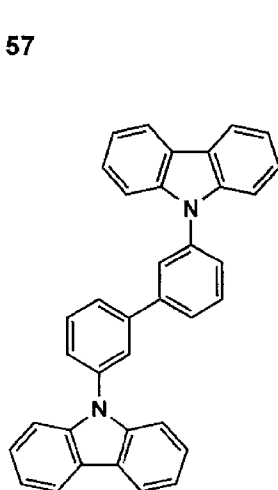
55



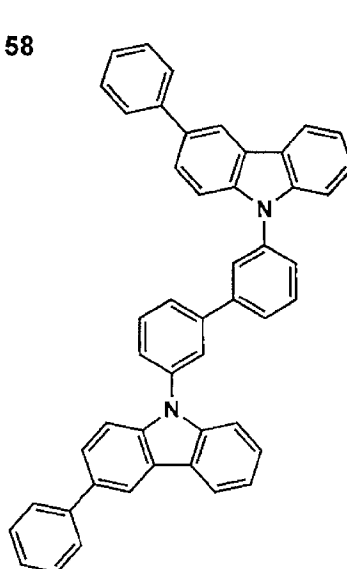
56



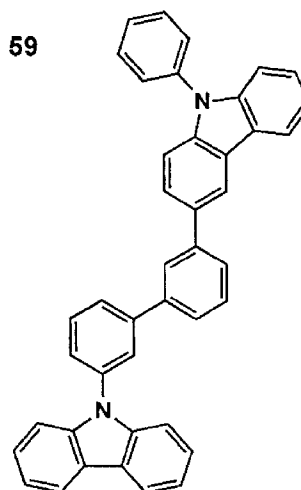
57



58



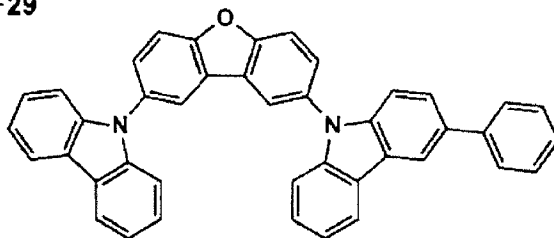
59



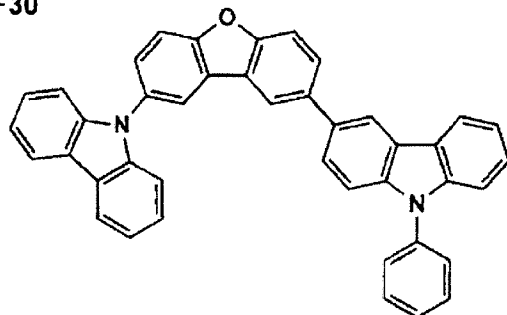
[0136]

[化49]

OC-29



OC-30



[0137] (2. 2) 従来公知のホスト化合物との併用

また、本発明にかかるホスト化合物は、複数種の化合物を併用して用いてもよい。複数種のホスト化合物を用いることにより、電荷（正孔および／または電子）の移動度（移動量）を調整することができ、有機EL素子の発光効率を向上させることができる。

[0138] 一般式（A）で表されるホスト化合物と併用してもよいホスト化合物としては、公知のホスト化合物を用いることができる。

[0139] 本発明において、併用することができるホスト化合物としては、特に制限はなく、従来有機EL素子で用いられる化合物を用いることができる。代表的にはカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体、芳香族誘導体、含窒素複素環化合物、チオフェン誘導体、フラン誘導体、オリゴアリーレン化合物等の基本骨格を有するもの、または、カルボリン誘導体やジアザカルバゾール誘導体（ここで、ジアザカルバゾール誘導体とは、カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の少なくとも1つの炭素原子が窒素原子で置換されているものを表す。）等が挙げられる。

[0140] 本発明に用いることができる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、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_g（ガラ

ス転移温度)である化合物が好ましい。

[0141] また、本発明に用いられる公知のホスト化合物としては、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（重合性発光ホスト）でもよく、このような化合物を二種または三種以上用いてもよい。

[0142] 具体的には、ホスト化合物の分子内において、カルバゾール骨格、トリアリールアミン骨格、チオフェン骨格、フラン骨格、カルボリン骨格、ジアザカルバゾール骨格を有するのが好ましく、カルバゾール骨格、チオフェン骨格、フラン骨格を有するのがより好ましい。

[0143] 公知のホスト化合物の具体例としては、たとえば、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2002-260861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号公報等に記載のホスト化合物が挙げられる。

[0144] (3) ウェットプロセス

本発明にかかる発光層は、ウェットプロセスで形成されることにより、発

光ドーパントが均一に含有された層となる。本発明において、ウェットプロセスは、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等の塗布法による成膜が好ましい。

[0145] 本発明にかかる有機EL素子材料を溶解または分散する液媒体としては、たとえば、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、酢酸エチル、酢酸イソプロピル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、3-メトキシブチルアセテート等の脂肪酸エステル類、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族炭化水素類、シクロヘキサン、デカリン、ドデカン等の脂肪族炭化水素類、DMF、DMSO等の有機溶媒を用いることができるが、素子中の含まれる溶媒量を抑制する点から、沸点が50～180℃の範囲の溶媒が好適に用いられる。また分散方法としては、超音波、高剪断力分散やメディア分散等の分散方法により分散することができる。

[0146] 本発明において、有機EL素子中に含まれる溶媒含有量としては、0.01～1 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の範囲である。溶媒含有量が0.01 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下の場合には、有機膜が疎となるため、素子駆動時の高電圧化を引き起こし、1 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以上の場合には、素子駆動時の物質拡散や発光材料の凝集を引き起こし、低効率、低駆動寿命となってしまう。

これらの溶媒含有量は、昇温脱離ガス分光法により求めることができる。

[0147] (4) その他の特性

本発明にかかる有機EL素子を白色素子にした場合、特定の発光ドーパント間の相互作用のみならず、異なる波長の発光ドーパント間の相互作用も軽減することができる。

たとえば、本発明において、白色素子を作製する際、上記青色リン光発光ドーパントに加えて、緑色発光ドーパントおよび赤色発光ドーパントが用いられるが、これら2つの発光ドーパントは長波すなわち π 共役長が長いため、 π - π 相互作用により分子間凝集し易くなっている。本発明においては、短波の青色リン光発光ドーパントとして、ヘテロ体のイリジウム錯体を用い

ているから、従来のトリス体と比較して、相互作用エネルギーの安定化部位を2か所もしくは4か所に限定し分子間凝集を抑えることができる。その結果として、短波の発光ドーパントから長波の緑色または赤色発光ドーパントへのエネルギー移動確率を減らすことができ、これまで低濃度でしかドーブできなかった長波の発光ドーパント量を増やすことが可能となり、さらなる長寿命化を図ることができる。

[0148] また、従来のドーパントとホスト化合物との組み合わせでは、ドーパントードーパント相互作用部位が6か所存在するため同分子相互作用確率が高く、ドーパントーホスト相互作用を優位とする、すなわちホスト分子間にドーパント分子を均一に分散させるためには、よりホスト化合物の混合比率を多くする必要があった。

本発明では、ヘテロ体のドーパントを用いているため、従来のトリス体と比較して、相互作用エネルギーの安定化部位を2か所もしくは4か所に限定でき、連鎖的にドーパントが凝集していくことを抑制することができる。その結果、ドーパントはより少ないホスト分子で分散させることができ、ドーパント化合物を高濃度でドーブすることができる。

ドーパントとホスト化合物との混合モル比としては、1 : 3 ~ 1 : 9 が好ましく、1 : 4 ~ 1 : 8 がより好ましく、1 : 5 ~ 1 : 7 がさらに好ましい。

これ以下のドーパント濃度では通常のトリス体と性能が変わらなく、合成的負荷の観点で好ましくない。また、これより高濃度の場合、ドーパントードーパント間距離が物理的に近くなるため、効果が頭打ちとなり好ましくない。

[0149] また、イリジウム錯体の製造工程において、目的とする錯体（主生成物）と配位子の配位比率が異なる他のイリジウム錯体（副生成物）が生成される場合がある。たとえば、構造式 $\text{Ir}(\text{A})_2(\text{B})$ の製造工程においては、副生成物として $\text{Ir}(\text{A})_3$ が生成される（AとBは異なる配位子である。）。

[0150] ここで、主生成物と副生成物の許容される混合モル比としては、99 : 9

5 : 0.05 ~ 99.50 : 0.50 の混合比で含有されていてもよい。

上記主生成物と副生成物は、共通の配位子を有するため、発光波長や HOMO-LUMO 準位が非常に近似している。本発明の配位子に 5 員環構造を有するリン光発光ドーパントは、発光層で正孔を隣接の正孔輸送層から受け取り、電子を発光層のホスト分子から受け取ると考えられるため、その注入が悪いとホール過剰になる部分が近傍の錯体を攻撃し、分解の原因となると考えられる。本発明においては、多くの主生成物が存在する中にごく少量の副生成物が混在することにより、一部で LUMO 準位が階段状となり、電子注入がスムーズになるため、この分解の原因を抑制していると考えられる。

[0151] また、緑色ドーパントによく用いられる 6 員環構造のフェニルピリジン配位子においてはこの効果は見られない。これは、本発明の 5 員環構造を有する配位子で形成される錯体が、フェニルピリジン配位子で形成される錯体に比べて配位子の金属に直接配位している部分の表面積が小さいため、電荷がたまった場合、より部分的に高エネルギーになりやすいためであると考えられる。

[0152] このような効果は、副生成物の混合比が上記範囲より小さい場合には観測されず、また、反対に混合比が大きい場合には、発光波長がブロードになり色度変化が大きく、効率低下が発生する。

[0153] また、本発明の実施態様としては、本発明の効果の観点から、隣接層との界面から 0 ~ 10 nm の範囲の発光ドーパントの平均濃度が全発光ドーパントの平均濃度に対して 50 % 以上であることが好ましく、発光層内の陽極に近い側に全発光ドーパントの平均濃度に対して 50 % 以上の平均濃度である範囲が存在することが好ましい。また、当該発光層の発光ホストの分子量が 1500 以下であることが好ましい。

[0154] 本発明における全発光ドーパントの平均濃度に対して 50 % 以上の平均濃度である範囲とは、当該発光層内に含まれる全発光ドーパントの平均濃度に対して 50 % 以上の発光ドーパントの平均濃度である範囲を指し、全て発光ドーパントであることも含まれる。

本発明では、当該範囲が隣接層との界面から0～5 nmであることを特徴としているが、好ましくは0～10 nmである。当該発光層内に含まれる全発光ドーパントの平均濃度に対して50%以上の平均濃度である範囲は、当該発光層内の陽極に近い側および陰極に近い側の両側に存在しても、片側のみに存在してもよい。片側にのみ存在する場合は、陽極に近い側に存在することが好ましい。

[0155] 隣接層との界面付近に全発光ドーパントの平均濃度に対して50%以上の平均濃度である範囲の形成方法としては、たとえば、発光層の塗布成膜時において、溶媒を高速に乾燥する方法がある。溶媒を高速に乾燥する手段としては、蒸気圧の高い溶媒を用いる、溶媒を送風により乾燥させる等がある。蒸気圧の高い溶媒とは20℃での蒸気圧が1.0 kPa以上の溶媒であり、このような溶媒としては、たとえば、トルエン（20℃蒸気圧：2.9 kPa）、酢酸エチル（20℃蒸気圧：2.9 kPa）、酢酸イソプロピル（20℃蒸気圧：5.3 kPa）、酢酸ノルマルプロピル（20℃蒸気圧：3.3 kPa）、メチルエチルケトン（20℃蒸気圧：10.5 kPa）が挙げられる。溶媒を送風により乾燥させるとは、発光層塗布直後に送風を当て乾燥させることであり、用いるホスト化合物あるいは発光ドーパントの特性や材料純度、または用いる溶媒の特性等に依存するため、その送風条件を一般的に規定することはできない。しかし、送風の温度および風速は、本発明にかかる発光層の形成に影響が出ない限り、大きいほど乾燥速度は速くなり、より速い乾燥が可能である。

[0156] 発光層内に含まれる全発光ドーパントの濃度の平均に対して、50%以上の平均濃度である範囲の測定方法としては、いくつか方法があるが、膜内の元素の量を高感度で分析可能で、かつ深さ方向の元素の濃度変化を追えることから二次イオン質量分析法（SIMS）を用いることが好ましい。二次イオン質量分析法については、たとえば、日本表面科学会「二次イオン質量分析法（表面科学技術選書）」（丸善）等を参考にすることができる。

[0157] 二次イオン質量分析法は、 10^{-8} Pa程度の高真空下で一次イオンと呼ば

れるイオンビームを試料表面に照射しスパッタリングを行う。それにより放出された構成粒子の中で、二次イオンを質量分析することにより表面に存在する元素を分析する方法である。表面をスパッタし、削り取っていく破壊分析ではあるが、表面から μm 以上の深さまでの元素の濃度変化を分析することが可能である。

[0158] 一次イオンとしては、たとえば、 Cs^+ 、 In^+ 、 Ga^+ 等の金属イオン種が好ましいが、どのイオン種を用いるのが好ましいかは測定対象元素によって使い分けられる。

[0159] 本発明では、具体的にはPhysical Electronics製のADEPT1010を使用して、一次イオン種は、 Cs^+ 、一次イオンの加速電圧は2kVの条件で有機EL素子内の深さ方向における各種元素の分布量を測定した。

[0160] 隣接層とは、ホスト化合物および発光ドーパントを含有する発光層に隣接する、発光層とは異なる機能を有する層であり、当該隣接層は陽極と発光層の間でも陰極と発光層の間でもよい。隣接層に特に制限はないが、たとえば、正孔注入層（陽極バッファ層）、電子注入層（陰極バッファ層）、正孔阻止層、電子阻止層、正孔輸送層、電子輸送層、中間層であり、キャリアの発光層への移動を容易にするために、隣接層は電子輸送層あるいは正孔輸送層が好ましい。

[0161] 上記のようにして発光層を形成した場合、発光輝度の低下および駆動電圧の上昇を抑えることができた。

その理由としては定かではないが、隣接層との界面付近を発光層内に含まれる全発光ドーパントの平均濃度に対して50%以上の平均濃度とすることで、キャリアの注入を阻害する要因が除かれ、発光輝度の低下および駆動電圧の上昇が抑制され、低電圧での駆動が可能になったと推定している。

[0162] 本発明において、ホスト化合物は2種以上用いてもよい。2種以上のホスト化合物を組み合わせることで、凝集や結晶化による発光効率の低下を防ぐことができるだけでなく、再結合効率を上げることができ、発光効率を改善

することができる。

[0163] すなわち、異なるエネルギー準位を持つ2種以上のホスト化合物を共存させることで、それぞれのホスト化合物のLUMO（もしくはHOMO）エネルギー準位が影響を及ぼし、単一のホスト化合物からなる場合やLUMO（もしくはHOMO）エネルギー準位を考慮せずにホスト化合物を複数用いた場合に比べて、キャリアトラップとホッピングのバランスがとれ、擬似的に広いエネルギーバンドを形成したようなLUMO（もしくはHOMO）の役割を持たせることができ、その結果、発光ドーパントへのエネルギー遷移が容易になり、ホールと電子との再結合効率が高まり、発光効率が向上すると考えられる。

[0164] さらに、擬似的に広いエネルギーバンドを形成したようなホスト化合物のLUMO（もしくはHOMO）エネルギー準位は、隣接した電子（もしくは正孔）輸送層等からのキャリア移動が容易になるだけでなく、LUMO（もしくはHOMO）エネルギー準位が異なる複数のリン光発光ドーパントへのキャリア移動が容易になるという特徴も合わせ持つ。

したがって、異なる有機層を接合した際に発生するエネルギー障壁による注入阻害を最小化できるだけでなく、キャリア注入されたホスト化合物から異なるエネルギー準位を持つ複数の発光ドーパントへのキャリア移動時に問題となるキャリアトラップの問題を最小化することができ、再結合確率の向上、さらには再結合領域の拡大により、発光効率の向上と長寿命化を同時に達成できる点で優れている。

[0165] これら2種以上のホスト化合物のLUMO（もしくはHOMO）エネルギー準位の絶対値は特に限定はされないが、それぞれのLUMOエネルギー準位の絶対値の差が、0.1～1.0 eVであることが好ましく、0.2～1.0 eVであることがより好ましい。LUMOエネルギー準位の絶対値の差が、0.1 eVより小さい場合には、上述の再結合確率向上の効果が小さく、1.0 eVより大きい場合には、逆に電荷の注入効率が悪くなることが考えられる。

[0166] また、本発明において発光ドーパントの分子ファンデルワールス体積に対し、異なる分子ファンデルワールス体積を持つ複数のホスト分子を混合させてもよい。ドーパント分子の大きさによっては、再結合確率、ひいては発光効率が異なっており、発光色の調整や寿命後の色変化に対する調整が困難であったが、発光ドーパント分子の間に異なる分子ファンデルワールス体積を持つ複数のホスト化合物を介在させることにより、上記問題を解決できると考えられる。

[0167] さらに、異なる分子ファンデルワールス体積を持つ複数の発光ドーパントと複数のホスト化合物が共存することで、層内の分子充填率が高まり、結果として発光を阻害する残留溶媒分子等の不純物が存在しにくい高密度な膜形成が可能となるだけでなく、同一分子との相互作用確率を低減することができるため、発光効率を下げる原因となる結晶化を生じさせにくいと考えられる。

[0168] 発光ドーパントの分子ファンデルワールス体積およびホスト化合物のファンデルワールス体積の上記関係から、少なくとも当該ホスト化合物間の分子ファンデルワールス体積の差が $10 \text{ \AA}^3$ 以上であることが好ましい。これにより、分子充填による電氣的劣化改善の効果が得られると考えられる。

[0169] 本発明において、分子ファンデルワールス体積とは、分子を構成する原子をファンデルワールス半径の球に置き換えて、該球を分子の形に配列したときの分子の表面より内側の体積を指す。

ところで、分子性結晶における平衡分子間隔、すなわち分子間相互作用のポテンシャル曲線の極小点における分子間隔をファンデルワールス距離と言うが、二つの分子をその距離以内に近接させるには非常に大きな力を必要とする。この意味で分子を一定の体積と形を持った剛体と考えることは妥当であり、また分子内の各原子がそれぞれ固有の半径の球状体積を占めると仮定することが一般的になされていることから、これら原子に固有の半径をファンデルワールス半径と呼ぶ。

[0170] これらのホスト化合物を複数混合する方法は、単色の発光素子においても

有効であるが、異なる発光波長の発光ドーパントを複数含む白色発光素子においてとりわけ好適である。

[0171] なお、発光ドーパントおよびホスト化合物の分子ファンデルワールス体積は、分子軌道計算支援ソフト「T e n c u b e / W M」で求めた値である。

[0172] (エネルギー準位)

L U M Oとは化合物の最低空分子軌道である。そして、L U M Oエネルギー準位とは、真空準位にある電子が化合物のL U M Oに落ちて安定化するエネルギーであり、真空準位を0としたときのエネルギーで定義される。

[0173] H O M Oとは化合物の最高被占分子軌道である。そして、H O M Oエネルギー準位とは、H O M Oにある電子を、真空準位に移動させるのに要するエネルギーに「-1」を掛けて得られた値で定義される。

[0174] 本発明において、H O M Oエネルギー準位およびL U M Oエネルギー準位の値は、米国G a u s s i a n社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるG a u s s i a n 9 8 (G a u s s i a n 9 8、R e v i s i o n A. 1 1 . 4, M. J. F r i s c h, e t a l, G a u s s i a n, I n c., P i t t s b u r g h P A, 2 0 0 2.)を用いて計算した時の値であり、キーワードとしてB 3 L Y P / L a n L 2 D Zを用いて構造最適化を行うことにより算出した値(e V単位換算値)と定義する。この計算値が有効な背景には、この手法で求めた計算値と実験値の相関が高いためである。

[0175] また、本発明者等は、発光層の形成において、特にホスト化合物の分子量が、塗布成膜後の発光層のX線小角散乱測定で低分子有機物による散乱線のギニエプロットの傾きが緩い、すなわち凝集や空隙の少ない、蒸着膜で形成されたような材料が分散された薄膜を形成することができ、得られる有機E L素子の特性(パワー効率および発光寿命)との関係において、ある好ましい関係があることを見出した。

発光層中の低分子有機物、特にホスト化合物の分子量としては、好ましくは400~2000の範囲であり、さらに好ましくは400~800の範囲である。

ここでいう「分子量」とは、従来公知の質量スペクトルを用いて得られるが、高分子（たとえば、分子量が10000以上のもの）については、従来公知のGPC（ゲルパーミエーションクロマトグラフィー）を用いて測定したものである。

[0176] 発光層のX線小角散乱の測定には、たとえば、株式会社リガク製ナノスケールX線構造評価装置NANO-Viewerのような汎用装置を用いてもよく、好ましくは、KEK/PF、SPRING-8、SAGA-LSのような大型放射光施設を利用したX線小角散乱装置を用いることができる。その測定条件を下記に示す。

[0177] X線としてSPRING-8の放射光を用い、波長1 Åで薄膜試料に照射した。

測定にはHUBER製多軸回折装置を用い、X線入射角 θ は0.2°で固定して薄膜試料に照射し、検出器はシンチレーションカウンタを用いて1〜43°までの散乱線測定を行った。

[0178] これら得られたX線小角散乱データの解析にはリガク社製粒径・空孔径解析ソフトウェアNANO-Solverを用いた。

X線を物質に入射すると、それを構成している各々の原子のもつ電子雲により一部が散乱される。散乱角の小さい範囲（本発明では1〜8°）からは、数nm〜数百nmの空間レベルの情報を得ることができ、これを利用した構造評価がX線小角散乱である。

X線小角散乱のプロファイルでは散乱角 θ の代わりに、一般に散乱ベクトル q が用いられる。 q は下記式(i)で与えられる。

[0179]
$$q = (4\pi/\lambda) \sin \theta \quad \cdots \quad (i)$$

式(i)中、「 λ 」はX線の波長、「 θ 」は散乱角を表す。

[0180] q の小さな領域はギニエ(Gunier)領域、大きな領域はポロド(Porod)領域と呼ばれ、前者からはより大きな空間的情報、粒子分散状態や長周期構造、後者からはより小さな領域の情報、高分子の重合状態、分散粒子の表面形状、蛋白質の構造解析等を得ることができる。

[0181] X線小角散乱において粒子解析を行う場合、ギニエプロットが一般的に用いられる。

粒径分布が比較的小さく、マトリックス中で粒子同士の相互作用が小さい場合、散乱強度 $I(q)$ は式 (ii) で表される。

[0182] $I(q) = I(0) \exp(-q^2 * R_g^2 / 3) \dots (ii)$

式 (ii) 中、「 $I(q)$ 」は散乱強度、「 R_g 」は慣性半径を表す。

[0183] この式はギニエの法則と呼ばれ、 q^2 に対し散乱強度 $I(q)$ をプロットした場合、その傾きは散乱体の慣性半径に依存することになる。すなわち膜内での分子密度の異なる凝集クラスターや空隙の大きさの情報が含まれている。

一般的に散乱体の粒子が小さく、均一に分散されている場合、このギニエプロットの傾きは緩くなり、粒子が大きく編在しているような場合、傾きが急になることが知られている。

[0184] 次に、本発明の有機EL素子の構成層として用いられる、注入層、阻止層、正孔輸送層、電子輸送層等について説明する。

[0185] 《正孔注入層3》

本発明にかかる正孔注入層（「陽極バッファ層」ともいう）とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために陽極と発光層との間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されている。

本発明において正孔注入層は必要に応じて設けられ、上記のように陽極と発光層又は陽極と正孔輸送層との間に存在させてもよい。

[0186] 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、正孔注入層に用いられる材料としては、たとえば、後述の正孔輸送層に用いられる材料等が挙げられる。

中でも、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニン誘導体、特表20

03-519432号公報や特開2006-135145号公報等に記載されているようなヘキサアザトリフェニレン誘導体、酸化バナジウムに代表される金属酸化物、アモルファスカーボン、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム錯体等に代表されるオルトメタル化錯体、トリアリールアミン誘導体等が好ましい。

上記の正孔注入層に用いられる材料は、単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

[0187] 《電子注入層7》

本発明にかかる電子注入層（「陰極バッファ層」ともいう）とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために陰極と発光層との間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されている。

本発明において電子注入層は必要に応じて設けられ、上記のように陰極と発光層との間、又は陰極と電子輸送層との間に存在させてもよい。

[0188] 電子注入層はごく薄い膜であることが好ましく、素材にもよるがその膜厚は0.1～5nmの範囲が好ましい。また、構成材料が断続的に存在する不均一な膜であってもよい。

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、電子注入層に好ましく用いられる材料の具体例としては、ストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属、フッ化リチウム、フッ化ナトリウム、フッ化カリウム等に代表されるアルカリ金属化合物、フッ化マグネシウム、フッ化カルシウム等に代表されるアルカリ土類金属化合物、酸化アルミニウムに代表される金属酸化物、リチウム8-ヒドロキシキノレート（Li q）等に代表される金属錯体等が挙げられる。また、後述の電子輸送材料を用いることも可能である。

また、上記の電子注入層に用いられる材料は、単独で用いてもよく、複数種を併用して用いてもよい。

[0189] 《正孔阻止層》

正孔阻止層とは、広い意味では電子輸送層の機能を有する層であり、好ましくは電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が小さい材料からなり、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。

本発明の有機EL素子に設ける正孔阻止層は、発光層の陰極側に隣接して設けられることが好ましい。

本発明にかかる正孔阻止層の膜厚としては、好ましくは3～100nmの範囲であり、さらに好ましくは5～30nmの範囲である。

正孔阻止層に用いられる材料としては、後述の電子輸送層に用いられる材料が好ましく用いられ、また、前述のホスト化合物として用いられる材料も正孔阻止層に好ましく用いられる。

[0190] 《電子阻止層》

電子阻止層とは、広い意味では正孔輸送層の機能を有する層であり、好ましくは正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が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、本発明にかかる電子阻止層として用いることができる。

本発明の有機EL素子に設ける電子阻止層は、発光層の陽極側に隣接して設けられることが好ましい。

本発明に係る電子阻止層の膜厚としては、好ましくは3～100nmの範囲であり、更に好ましくは5～30nmの範囲である。

電子阻止層に用いられる材料としては、後述の正孔輸送層に用いられる材

料が好ましく用いられ、また、前述のホスト化合物として用いられる材料も電子阻止層に好ましく用いられる。

[0191] 《正孔輸送層4》

本発明において正孔輸送層とは、正孔を輸送する機能を有する材料からなり、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有していればよい。

本発明の正孔輸送層の総膜厚については特に制限はないが、通常は5 nm～5 μmの範囲であり、より好ましくは2～500 nmであり、さらに好ましくは5～200 nmである。

[0192] 正孔輸送層に用いられる材料（以下、正孔輸送材料という）としては、正孔の注入性または輸送性、電子の障壁性のいずれかを有していればよく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

たとえば、ポルフィリン誘導体、フタロシアニン誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ポリアリーラルカン誘導体、トリアリーラルアミン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、イソインドール誘導体、アントラセンやナフタレン等のアセン系誘導体、フルオレン誘導体、フルオレノン誘導体、およびポリビニルカルバゾール、芳香族アミンを主鎖または側鎖に導入した高分子材料またはオリゴマー、ポリシラン、導電性ポリマーまたはオリゴマー（たとえば、PEDOT:PSS、アニリン系共重合体、ポリアニリン、ポリチオフェン等）等が挙げられる。

トリアリーラルアミン誘導体としては、 α NPDに代表されるベンジジン型や、MTDATAに代表されるスターバースト型、トリアリーラルアミン連結コア部にフルオレンやアントラセンを有する化合物等が挙げられる。

また、特表2003-519432号公報や特開2006-135145号公報等に記載されているようなヘキサアザトリフェニレン誘導体も同様に正孔輸送材料として用いることができる。

[0193] さらに、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号公報の各公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)等に記載されたものが挙げられる。

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型正孔輸送材料やp型-Si、p型-SiC等の無機化合物を用いることもできる。さらに、Ir(ppy)₃に代表されるような中心金属にIrやPtを有するオルトメタル化有機金属錯体も好ましく用いられる。

[0194] 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、トリアールアミン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、アザトリフェニレン誘導体、有機金属錯体、芳香族アミンを主鎖または側鎖に導入した高分子材料またはオリゴマー等が好ましく用いられる。

[0195] 本発明の有機EL素子に用いられる、公知の好ましい正孔輸送材料の具体例としては、上記で挙げた文献の他、以下の文献に記載の化合物等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

たとえば、Appl. Phys. Lett. 69, 2160 (1996)、J. Lumin. 72-74, 985 (1997)、Appl. Phys. Lett. 78, 673 (2001)、Appl. Phys. Lett. 90, 183503 (2007)、Appl. Phys. Lett. 90, 183503 (2007)、Appl. Phys. Lett. 51, 913 (1987)、Synth. Met. 87, 171 (1997)、Synth. Met. 91, 209 (1997)、Synth. Met. 111, 421 (2000)、SID Symposium Digest, 37, 923 (2006)、J. Mater. Chem. 3, 319 (1993)、Adv. Mater. 6, 677 (1994)、Chern. Mater

、 15, 3148 (2003)、米国特許出願公開第2003/0162053号明細書、米国特許出願公開第2002/0158242号明細書、米国特許出願公開第2006/0240279号明細書、米国特許出願公開第2008/0220265号明細書、米国特許第5061569号明細書、国際公開第2007/002683号、国際公開第2009/018009号、欧州特許出願公開第0650955号明細書、米国特許出願公開第2008/0124572号明細書、米国特許出願公開第2007/0278938号明細書、米国特許出願公開第2008/0106190号明細書、米国特許出願公開第2008/0018221号明細書、国際公開第2012/115034号、特表2003-519432号公報、特開2006-135145号公報、米国特許出願公開第2013/0049576号明細書等である。

正孔輸送材料は、単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

[0196] 《電子輸送層6》

本発明において電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する材料からなり、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い。

本発明の電子輸送層の総膜厚については特に制限はないが、通常は2 nm～5 μ mの範囲であり、より好ましくは2～500 nmであり、さらに好ましくは5～200 nmである。

また、有機EL素子においては発光層で生じた光を電極から取り出す際、発光層から直接取り出される光と、光を取り出す電極と対極に位置する電極によって反射されてから取り出される光とが干渉を起こすことが知られている。光が陰極で反射される場合は、電子輸送層の総膜厚を数 nm～数 μ mの間で適宜調整することにより、この干渉効果を効率的に利用することが可能である。

一方で、電子輸送層の膜厚を厚くすると電圧が上昇しやすくなるため、特に膜厚が厚い場合においては、電子輸送層の電子移動度は $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{Vs}$

以上であることが好ましい。

[0197] 電子輸送層に用いられる材料（以下、電子輸送材料という）としては、電子の注入性または輸送性、正孔の障壁性のいずれかを有していればよく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

たとえば、含窒素芳香族複素環誘導体（カルバゾール誘導体、アザカルバゾール誘導体（カルバゾール環を構成する炭素原子の1つ以上が窒素原子に置換されたもの）、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、ピラジン誘導体、ピリダジン誘導体、トリアジン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、フェナントロリン誘導体、アザトリフェニレン誘導体、オキサゾール誘導体、チアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ベンズオキサゾール誘導体、ベンズチアゾール誘導体等）、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾチオフェン誘導体、シロール誘導体、芳香族炭化水素環誘導体（ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、トリフェニレン等）等が挙げられる。

また、配位子にキノリノール骨格やジベンゾキノリノール骨格を有する金属錯体、たとえば、トリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq）、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、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又は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も用いられる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-SiC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。

また、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。

[0198] 本発明にかかる電子輸送層においては、電子輸送層にドーパ材をゲスト材料としてドーピングして、 n 性の高い（電子リッチ）電子輸送層を形成してもよい。ドーパ材としては、金属錯体やハロゲン化金属など金属化合物等の n 型ドーパントが挙げられる。このような構成の電子輸送層の具体例としては、たとえば、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)等の文献に記載されたものが挙げられる。

[0199] 本発明の有機EL素子に用いられる、公知の好ましい電子輸送材料の具体例としては、以下の文献に記載の化合物等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

たとえば、米国特許第6528187号明細書、米国特許第7230107号明細書、米国特許出願公開第2005/0025993号明細書、米国特許出願公開第2004/0036077号明細書、米国特許出願公開第2009/0115316号明細書、米国特許出願公開第2009/0101870号明細書、米国特許出願公開第2009/0179554号明細書、国際公開第2003/060956号、国際公開第2008/132085号、Appl. Phys. Lett. 75, 4 (1999)、Appl. Phys. Lett. 79, 449 (2001)、Appl. Phys. Lett. 81, 162 (2002)、Appl. Phys. Lett. 81, 162 (2002)、Appl. Phys. Lett. 79, 156 (2001)、米国特許第7964293号明細書、米国特許出願公開第2009/030202号明細書、国際公開第2004080975号、国際公開第2004063159号、国際公開第2005/085387号、国際公開第2006/067931号、国際公開第2007/086552号、国際公開第2008/114690号、国際公開第2009/069442号、

国際公開第2009/066779号、国際公開第2009/054253号、国際公開第2011/086935号、国際公開第2010/150593号、国際公開第2010/047707号、欧州特許出願公開第2311826号明細書、特開2010-251675号公報、特開2009-209133号公報、特開2009-124114号公報、特開2008-277810号公報、特開2006-156445号公報、特開2005-340122号公報、特開2003-45662号公報、特開2003-31367号公報、特開2003-282270号公報、国際公開第2012/115034号等である。

[0200] 本発明におけるより好ましい電子輸送材料としては、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、ピラジン誘導体、トリアジン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾチオフエン誘導体、カルバゾール誘導体、アザカルバゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体が挙げられる。

電子輸送材料は、単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

[0201] 《陽極2》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4 eV以上）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するものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、インジウムチンオキシド（ITO）、 SnO_2 、 ZnO 等の導電性透明材料が挙げられる。また、 IDIXO （ $\text{In}_2\text{O}_3-\text{ZnO}$ ）等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。

陽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 μm 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成膜法を用い

ることもできる。

この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常は、10～1000 nmの範囲であり、好ましくは10～200 nmの範囲で選ばれる。

[0202] 《陰極8》

一方、陰極としては仕事関数の小さい（4 eV以下）金属（電子注入性金属と称する。）、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するものが用いられる。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。これらの中で、電子注入性および酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、たとえば、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、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。

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ることにより、作製することができる。

また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm～5 μ mの範囲内、好ましくは50～200 nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

[0203] また、陰極に上記金属を1～20 nmの範囲内の膜厚で作製した後に、陽極の説明で挙げた導電性透明材料をその上に作製することで、透明または半透明の陰極を作製することができ、これを応用することで陽極と陰極の両方

が透過性を有する素子を作製することができる。

[0204] 《支持基板 1》

本発明の有機EL素子に用いることのできる支持基板（以下、基体、基板、基材、支持体等ともいう。）としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また透明であっても不透明であってもよい。支持基板側から光を取り出す場合には、支持基板は透明であることが好ましい。好ましく用いられる透明な支持基板としては、ガラス、石英、透明樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい支持基板は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

[0205] 樹脂フィルムとしては、たとえば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）等のポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロファン、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）、セルロースアセテートフタレート、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類またはそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリルあるいはポリアリレート類、アトロン（商品名J S R社製）あるいはアペル（商品名三井化学社製）といったシクロオレフィン系樹脂等を挙げられる。

[0206] 樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよく、J I S K 7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ $25 \pm 0.5^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度（ 90 ± 2 ）%RH）が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のバリア性フィルムであることが好ましく、さらには、J I S K 7126-1987に準拠した

方法で測定された酸素透過度が、 $10^{-3} \text{ cm}^3 / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が $10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましく、前記の水蒸気透過度が $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下であることがさらに好ましい。

[0207] バリア膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、たとえば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。さらに、該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることがより好ましい。無機層と有機層の積層順については特に制限はないが、両者を交互に複数回積層させることが好ましい。

[0208] バリア膜の形成方法については特に限定はなく、たとえば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができるが、特開2004-68143号公報に記載されているような大気圧プラズマ重合法によるものが特に好ましい。

[0209] 不透明な支持基板としては、たとえば、アルミ、ステンレス等の金属板、フィルムや不透明樹脂基板、セラミック製の基板等が挙げられる。

[0210] 本発明の有機EL素子の発光の室温における外部取り出し効率は、1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。ここに、外部取り出し量子効率(%) = 有機EL素子外部に発光した光子数 / 有機EL素子に流した電子数 $\times 100$ である。

[0211] また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。色変換フィルターを用いる場合においては、有機EL素子の発光の λ_{max} は480nm以下が好ましい。

[0212] 《封止》

本発明に用いられる封止手段としては、たとえば、封止部材と電極、支持

基板とを接着剤で接着する方法を挙げることができる。

[0213] 封止部材としては、有機EL素子の表示領域を覆うように配置されていればよく、凹板状でも平板状でもよい。また透明性、電気絶縁性は特に問わない。

[0214] 具体的には、ガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウムおよびタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。

[0215] 本発明においては、素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム、金属フィルムを好ましく使用することができる。さらには、ポリマーフィルムは、JIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $1 \times 10^{-3} \text{ cm}^3 / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された水蒸気透過度 ($25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 (90 ± 2) %RH) が $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のものであることが好ましい。

[0216] 封止部材を凹状に加工するのは、サンドブラスト加工、化学エッチング加工等が使われる。

[0217] 接着剤として具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化および熱硬化型接着剤、2-シアノアクリル酸エステル等の湿気硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系等の熱および化学硬化型（二液混合）を挙げることができる。また、ホットメルト型のポリアミド、ポリエステル、ポリオレフィンを挙げ

ることができる。また、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂接着剤を挙げることができる。

[0218] なお、有機EL素子が熱処理により劣化する場合があるので、室温から80℃までに接着硬化できるものが好ましい。また、接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。封止部分への接着剤の塗布は市販のディスペンサーを使ってもよいし、スクリーン印刷のように印刷してもよい。

[0219] また、有機層を挟み支持基板と対向する側の電極の外側に該電極と有機層を被覆し、支持基板と接する形で無機物、有機物の層を形成し封止膜とすることも好適にできる。この場合、該膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、たとえば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。さらに、該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることが好ましい。これらの膜の形成方法については、特に限定はなく、たとえば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができる。

[0220] 封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相および液相では、窒素、アルゴン等の不活性気体やフッ化炭化水素、シリコンオイルのような不活性液体を注入することが好ましい。また、真空とすることも可能である。また、内部に吸湿性化合物を封入することもできる。

[0221] 吸湿性化合物としては、たとえば、金属酸化物（たとえば、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム等）、硫酸塩（たとえば、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸コバルト等）、金属ハロゲン化物（たとえば、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、フッ化セシウム、フッ化タンタル、臭化セリウム、臭化マグネシウム、沃化バリウム、沃化マグネシウム等）、過塩

素酸類（たとえば、過塩素酸バリウム、過塩素酸マグネシウム等）等が挙げられ、硫酸塩、金属ハロゲン化物および過塩素酸類においては無水塩が好適に用いられる。

[0222] 《保護膜、保護板》

有機層を挟み支持基板と対向する側の封止膜、あるいは封止用フィルムの外側に、素子の機械的強度を高めるために保護膜、あるいは保護板を設けてもよい。特に、封止が封止膜により行われている場合には、その機械的強度は必ずしも高くないため、このような保護膜、保護板を設けることが好ましい。これに使用することができる材料としては、封止に用いたのと同様なガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等を用いることができるが、軽量かつ薄膜化ということからポリマーフィルムを用いることが好ましい。

[0223] 《光取り出し》

有機EL素子は、空気よりも屈折率の高い（屈折率が1.7～2.1の範囲内程度）層の内部で発光し、発光層で発生した光のうち15%から20%程度の光しか取り出せないことが一般的に言われている。これは、臨界角以上の角度 θ で界面（透明基板と空気との界面）に入射する光は、全反射を起こし素子外部に取り出すことができないことや、透明電極ないし発光層と透明基板との間で光が全反射を起こし、光が透明電極ないし発光層を導波し、結果として光が素子側面方向に逃げるためである。

[0224] この光の取り出しの効率を向上させる手法としては、たとえば、透明基板表面に凹凸を形成し、透明基板と空気界面での全反射を防ぐ方法（米国特許第4774435号明細書）、基板に集光性を持たせることにより効率を向上させる方法（特開昭63-314795号公報）、素子の側面等に反射面を形成する方法（特開平1-220394号公報）、基板と発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法（特開昭62-172691号公報）、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法（特開2001-202827号公報）、基板、透明電

極層や発光層のいずれかの層間（含む、基板と外界間）に回折格子を形成する方法（特開平 1 1 - 2 8 3 7 5 1 号公報）等がある。

[0225] 本発明においては、これらの方法を本発明の有機 EL 素子と組み合わせて用いることができるが、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法、あるいは基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間（含む、基板と外界間）に回折格子を形成する方法を好適に用いることができる。

[0226] 本発明はこれらの手段を組み合わせることにより、さらに高輝度あるいは耐久性に優れた素子を得ることができる。

[0227] 透明電極と透明基板の間に低屈折率の媒質を光の波長よりも長い厚みで形成すると、透明電極から出てきた光は、媒質の屈折率が低いほど外部への取り出し効率が高くなる。

[0228] 低屈折率層としては、たとえば、エアロゲル、多孔質シリカ、フッ化マグネシウム、フッ素系ポリマー等が挙げられる。透明基板の屈折率は一般に 1.5 ~ 1.7 の範囲内程度であるので、低屈折率層は屈折率がおよそ 1.5 以下であることが好ましい。また、さらに 1.35 以下であることが好ましい。

[0229] また、低屈折率媒質の厚みは媒質中の波長の 2 倍以上となるのが望ましい。これは低屈折率媒質の厚みが、光の波長程度になってエバネッセントで染み出した電磁波が基板内に入り込む膜厚になると、低屈折率層の効果が薄れるからである。

[0230] 全反射を起こす界面もしくはいずれかの媒質中に回折格子を導入する方法は、光取り出し効率の向上効果が高いという特徴がある。この方法は回折格子が 1 次の回折や 2 次の回折といったいわゆるブラッグ回折により、光の向きを屈折とは異なる特定の向きに変えることができる性質を利用して、発光層から発生した光のうち層間での全反射等により外に出ることができない光を、いずれかの層間若しくは、媒質中（透明基板内や透明電極内）に回折格子を導入することで光を回折させ、光を外に取り出そうとするものである。

[0231] 導入する回折格子は、二次元的な周期屈折率を持っていることが望ましい。これは発光層で発光する光はあらゆる方向にランダムに発生するので、ある方向にのみ周期的な屈折率分布を持っている一般的な１次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。しかしながら、屈折率分布を二次元的な分布にすることにより、あらゆる方向に進む光が回折され、光の取り出し効率が上がる。

[0232] 回折格子を導入する位置としては前述のとおり、いずれかの層間もしくは媒質中（透明基板内や透明電極内）でもよいが、光が発生する場所である有機発光層の近傍が望ましい。

[0233] このとき、回折格子の周期は媒質中の光の波長の約 $1/2 \sim 3$ 倍の範囲内程度が好ましい。

[0234] 回折格子の配列は、正方形のラチス状、三角形のラチス状、ハニカムラチス状等、２次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

[0235] 《集光シート》

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、支持基板の光取り出し側に、たとえば、マイクロレンズアレイ状の構造を設けるように加工したり、あるいは、いわゆる集光シートと組み合わせることにより、特定方向、たとえば、素子発光面に対し正面方向に集光することにより、特定方向上の輝度を高めることができる。

[0236] マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一辺が $30 \mu\text{m}$ でその頂角が 90° となるような四角錐を二次元に配列する。一辺は $10 \sim 100 \mu\text{m}$ の範囲内が好ましい。これより小さくなると回折の効果が発生して色付き、大きすぎると厚さが厚くなり好ましくない。

[0237] 集光シートとしては、たとえば、液晶表示装置のＬＥＤバックライトで実用化されているものを用いることが可能である。このようなシートとして、たとえば、住友スリーエム社製輝度上昇フィルム（ＢＥＦ）等を用いることができる。プリズムシートの形状としては、たとえば、基材に頂角 90° 、ピッチ $50 \mu\text{m}$ の△状のストライプが形成されたものであってもよいし、頂

角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であってもよい。

[0238] また、発光素子からの光放射角を制御するために、光拡散板・フィルムを集光シートと併用してもよい。たとえば、(株)きもと製拡散フィルム(ライトアップ)等を用いることができる。

[0239] 《有機EL素子の作製方法》

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極からなる有機EL素子の作製法を説明する。

[0240] まず、適当な基体上に所望の電極物質、たとえば、陽極用物質からなる薄膜を $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10\sim200\text{nm}$ の範囲内の膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ陽極を作製する。

[0241] 次に、この上に有機EL素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層の有機化合物薄膜を形成させる。

[0242] これら各層の形成方法としては、蒸着法、ウェットプロセス(スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法)等があるが、本発明においては、上記一般式(1)～(5)のいずれかで表されるイリジウム錯体および上記一般式(A)で表されるホスト化合物を含む有機化合物層においては、ウェットプロセスにより成膜され、特に、発光層の形成に好適に用いられる。

また、他の有機化合物層においても、均質な膜が得られやすく、素材が任意の比率で混合でき、かつピンホールが生成しにくい等の点から、ウェットプロセスが好ましく、中でも、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等の塗布法による成膜が好ましい。

[0243] 本発明にかかる有機EL材料を溶解または分散する液媒体としては、たとえば、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、酢酸エチル等の脂肪酸エステル類、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族炭化水素類

、シクロヘキサン、デカリン、ドデカン等の脂肪族炭化水素類、DMF、DMO等の有機溶媒を用いることができる。また、分散方法としては、超音波、高剪断力分散やメディア分散等の分散方法により分散することができる。

[0244] これらの層を形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を1 μm 以下、好ましくは、50～200 nmの範囲の膜厚になるように、たとえば、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより所望の有機EL素子が得られる。

[0245] また作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。このようにして得られた多色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には陽極を+、陰極を-の極性として電圧2～40 Vの範囲内程度を印加すると発光が観測できる。また交流電圧を印加してもよい。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

[0246] 《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、たとえば、照明装置（家庭用照明、車内照明）、時計や液晶用バックライト、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。

本発明の有機EL素子においては、必要に応じ成膜時にメタルマスクやインクジェットプリンティング法等でパターンニングを施してもよい。パターンニングする場合は、電極のみをパターンニングしてもよいし、電極と発光層をパターンニングしてもよいし、素子全層をパターンニングしてもよく、素子の作製においては、従来公知の方法を用いることができる。

[0247] 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。

実施例 1

[0248] 《有機EL素子の作製》

(1) 有機EL素子（サンプル）1-1の作製

(1. 1) ガスバリア性の可撓性フィルムの作製

可撓性フィルムとして、ポリエチレンナフタレートフィルム（帝人デュポン社製フィルム、以下、PENと略記する）の陽極を形成する側の全面に、特開2004-68143号公報に記載の構成からなる大気圧プラズマ放電処理装置を用いて、連続して可撓性フィルム上に、 SiO_x からなる無機物のガスバリア膜を厚さ500nmとなるように形成し、酸素透過度 $0.001 \text{ cm}^3 / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下、水蒸気透過度 $0.001 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のガスバリア性の可撓性フィルムを作製した。

[0249] (1. 2) 陽極の形成

準備したガスバリア性の可撓性フィルム上に厚さ120nmのITO（インジウムチンオキシド）をスパッタ法により成膜し、フォトリソグラフィ法によりパターニングを行い、陽極を形成した。

なお、パターンは、発光面積が50mm平方になるようなパターンとした。

[0250] (1. 3) 正孔注入層の形成

パターニング後のITO基板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。この基板上に、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ネート（PEDOT/PSSと略記、Bayer製、Baytron PAI 4083）を純水で70%に希釈した溶液を3000rpm、30秒でスピコート法により成膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚30nmの正孔注入層を設けた。

[0251] (1. 4) 正孔輸送層の形成

この基板を、窒素ガス（グレードG1）を用いた窒素雰囲気下に移し、下記組成の正孔輸送層組成物を、1500rpm、30秒でスピンコート法により成膜した後、160℃で30分間保持し、膜厚30nmの正孔輸送層とした。

[0252] <正孔輸送層組成物>

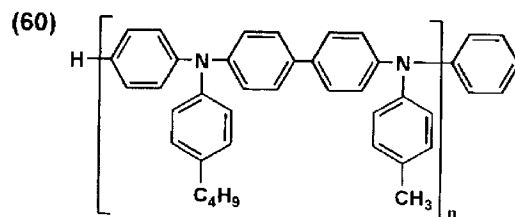
正孔輸送材料用高分子化合物（60）（重量平均分子量 $M_w = 80000$ ）

5質量部

クロロベンゼン

1000質量部

[0253] [化50]



[0254] (1. 5) 発光層の形成

次いで、下記組成の発光層組成物を1500rpm、30秒でスピンコート法によりそれぞれ成膜した後、120℃で30分間保持し膜厚50nmの発光層をそれぞれ形成した。

[0255] <発光層組成物>

OC-29（ホスト化合物の具体例）

8.78質量部

DP-1（リン光発光ドーパントの具体例）

3.01質量部

酢酸イソプロピル

2000質量部

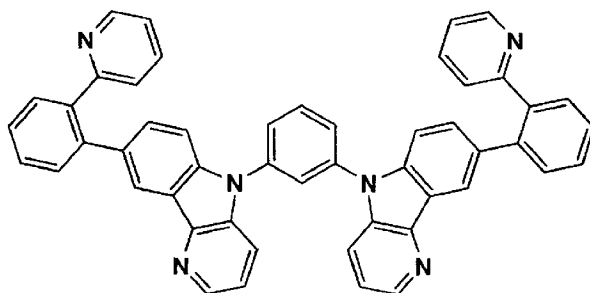
[0256] (1. 6) 電子輸送層の形成

続いて、20mgの下記化合物Aを4mlのテトラフルオロプロパノール（TFPO）に溶解した溶液を、1500rpm、30秒でスピンコート法により成膜した後、120℃で30分間保持し、膜厚30nmの電子輸送層とした。

[0257]

[化51]

化合物A



[0258] (1. 7) 電子注入層、陰極の形成

続いて、基板を大気に曝露することなく真空蒸着装置へ取り付けた。また、モリブデン製抵抗加熱ボートにフッ化ナトリウムおよびフッ化カリウムを入れたものを真空蒸着装置に取り付け、真空槽を 4×10^{-5} Pa まで減圧した後、前記ボートに通電して加熱してフッ化ナトリウムを 0.02 nm/秒 で前記電子輸送層上に膜厚 1 nm の薄膜を形成し、続けて同様にフッ化カリウムを 0.02 nm/秒 でフッ化ナトリウム上に膜厚 1.5 nm の電子注入層を形成した。

引き続き、アルミニウムを蒸着して厚さ 100 nm の陰極を形成した。

[0259] (1. 8) 封止および有機EL素子の作製

引き続き、市販のロールラミネート装置を用いて封止部材を接着し、有機EL素子のサンプル1-1を製作した。

[0260] 詳しくは、封止部材として、可撓性の厚み $30 \mu\text{m}$ のアルミニウム箔（東洋アルミニウム株式会社製）に、ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム（ $12 \mu\text{m}$ 厚）をドライラミネーション用の接着剤（2液反応型のウレタン系接着剤）を用いラミネートした（接着剤層の厚み $1.5 \mu\text{m}$ ）ものを用いた。

[0261] アルミニウム面に封止用接着剤として、熱硬化性接着剤を、ディスペンサーを使用してアルミ箔の接着面（つや面）に沿って厚み $20 \mu\text{m}$ で均一に塗布した。これを 100 Pa 以下の真空下で 12 時間乾燥させた。さらに露点温度が -80°C 以下、酸素濃度 0.8 ppm の窒素雰囲気下へ移動し、 12

時間以上乾燥させ、封止用接着剤の含水率を100ppm以下となるように調整した。

熱硬化接着剤としては下記の(A)～(C)を混合したエポキシ系接着剤を用いた。

[0262] (A) ビスフェノールAジグリシジルエーテル (DGEBA)

(B) ジシアンジアミド (DICY)

(C) エポキシアダクト系硬化促進剤

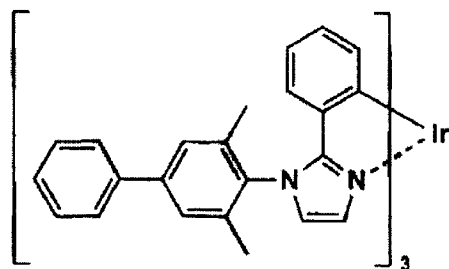
[0263] 以上のようにして、封止基板を、取り出し電極および電極リードの接合部を覆うようにして密着・配置して、圧着ロールを用いて厚着条件、圧着ロール温度120℃、圧力0.5MPa、装置速度0.3m/minで密着封止して、サンプル1を作製した。

[0264] (2) 有機EL素子(サンプル)1-2～1-18の作製

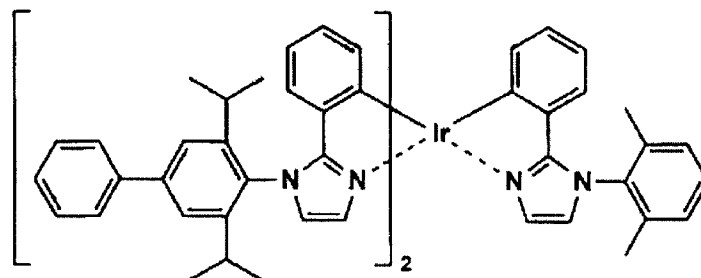
サンプル1の作製において、リン光発光ドーパント、ホスト化合物および混合モル比を表1に記載のとおりに変更した以外は同様にして、有機EL素子のサンプル1-2～1-18を作製した。

[0265] [化52]

比較1



比較2



[0266] 《有機EL素子の評価》

サンプル 1-1 ～ 1-18 に対し、下記の各評価を行った。

[0267] (1) 塗布液の析出性評価

各サンプルの発光層の塗布液を 3 日間放置した後に、目視による析出評価を行った。

評価結果を表 1 に示す。

表 1 中、各判断基準の定義は下記のとおりとした。

[0268] ◎：無色透明であり析出が全くない

○：塗布液容器に若干粒が見られるが、再攪拌するとすぐに問題なく溶ける

△：塗布液容器に粒が確認され、5 分以上再攪拌をしなければ溶けない

×：塗布液が白濁し、再攪拌しても全く溶けない

[0269] (2) 膜中の溶媒含有量評価

各サンプルの発光層の形成方法と同様にして、シリコンウェハー上に発光層を形成し、熱脱離スペクトル測定装置「TDS 1200（電子科学株式会社製）」を使用し、単位面積当たりの溶媒脱離量から膜中の溶媒含有量を求めた。

評価結果を表 1 に示す。

なお、溶媒含有量はサンプル 1-15 の溶媒含有量を 100 とする相対値で表した。

表 1 中、数値が小さいほど、高効率であり、連続駆動安定性にも優れていることを示している。

[0270] (3) 駆動電圧および発光効率の測定

各サンプルに対し、室温（約 23 ～ 25 °C の範囲内）で、2.5 mA / cm² の定電流密度条件下による点灯を行い、分光放射輝度計 CS-2000（コニカミノルタセンシング社製）を用いて、各サンプルの発光輝度を測定し、当該電流値における駆動電圧および発光効率（外部取り出し効率）を求めた。

評価結果を表 1 に示す。

なお、駆動電圧および発光効率はサンプル 1 - 15 の駆動電圧および発光効率を 100 とする相対値で表した。

表 1 中、駆動電圧の数値が小さいほど、また、発光効率の数値が大きいほど、低電力駆動、高効率であり優れていることを示している。

[0271] (4) 連続駆動安定性（半減寿命）の評価

各サンプルを半径 5 cm の円柱に巻きつけ、その後各サンプルを折り曲げた状態で連続駆動させ、上記分光放射輝度計 CS-2000 を用いて輝度を測定し、測定した輝度が半減する時間（LT50）を求めた。駆動条件は、連続駆動開始時に 4000 cd/m² となる電流値とした。

評価結果を表 1 に示す。

なお、半減寿命はサンプル 1 - 15 の半減寿命を 100 とする相対値で表した。

表 1 中、数値が大きいほど、連続駆動安定性に優れている（長寿命である）ことを示している。

[0272] [表1]

サンプル	ドーパント化合物	ホスト化合物	混合モル比	析出	溶媒含有量	発光効率	駆動電圧	半減寿命	備考
			(ドーパント:ホスト)						
1-1	DP-1	OC-29	1:6	◎	78	120	80	215	本発明
1-2	DP-1	OC-29	1:5	◎	76	118	78	185	本発明
1-3	DP-1	OC-29	1:7	◎	81	118	83	195	本発明
1-4	DP-1	OC-29	1:4	○	80	112	77	170	本発明
1-5	DP-1	OC-29	1:8	◎	87	117	81	175	本発明
1-6	DP-1	OC-29	1:3	○	84	110	82	155	本発明
1-7	DP-2	OC-29	1:6	◎	81	119	81	205	本発明
1-8	DP-5	OC-29	1:6	◎	83	117	83	198	本発明
1-9	DP-6	OC-29	1:6	◎	82	118	81	187	本発明
1-10	DP-10	OC-29	1:6	◎	84	118	84	192	本発明
1-11	DP-1	OC-30	1:6	◎	79	120	81	204	本発明
1-12	DP-1	53	1:6	◎	85	115	82	196	本発明
1-13	DP-1	6	1:6	◎	82	116	83	183	本発明
1-14	DP-1	1	1:6	○	89	110	87	150	本発明
1-15	比較 1	OC-29	1:9	△	100	100	100	100	比較例
1-16	比較 1	OC-29	1:8	×	103	93	98	94	比較例
1-17	比較 2	OC-29	1:9	△	99	99	102	103	比較例
1-18	比較 2	OC-29	1:8	×	98	87	97	89	比較例

[0273] (5) まとめ

表 1 に示すとおり、本発明のサンプル 1-1 ~ 1-14 は、比較例のサンプル 1-15 ~ 1-18 と比較して、素子材料の析出、溶媒含有量、発光効率、駆動電圧および寿命において、優れていることが明らかである。

以上から、ウェットプロセスにより成膜された発光層に、一般式 (1) で表されるイリジウム錯体と、一般式 (A) で表されるホスト化合物とを含有させることが有用であることがわかる。

[0274] 特に、本発明における有機 EL 素子は、表示装置および照明装置に用いた場合、有用であることがわかる。

実施例 2

[0275] 《白色有機 EL 素子の作製》

(1) 白色有機 EL 素子 (サンプル) 2-1 の作製

サンプル 1-1 の作製において、発光層組成物を下記のように変更した以外は同様にして、白色有機 EL 素子のサンプル 2-1 を作製した。

[0276] <発光層組成物>

OC-29 (ホスト化合物の具体例)	8.78 質量部
DP-1 (リン光発光ドーパントの具体例)	3.01 質量部
D-67 (従来公知の発光ドーパントの具体例)	0.05 質量部
D-75 (従来公知の発光ドーパントの具体例)	0.05 質量部
酢酸イソプロピル	2000 質量部

[0277] (2) 白色有機 EL 素子 (サンプル) 2-2 ~ 2-4 の作製

サンプル 2-1 の作製において、ドーパント (DP-1) および混合モル比を表 2 に記載のとおりに変更した以外は同様にして、白色有機 EL 素子のサンプル 2-2 ~ 2-4 を作製した。

なお、混合モル比は従来公知の発光ドーパントを除くリン光発光ドーパントとホスト化合物との混合モル比を表している。

[0278] 《白色有機 EL 素子の評価》

サンプル 2-1 ~ 2-4 に対し、実施例 1 と同様に評価を行った。

評価結果を表 2 に示す。

なお、評価結果はサンプル 2－3 の値を 100 とする相対値で表した。

[0279] [表2]

サンプル	ドーパント 化合物	ホスト 化合物	混合モル比	析出	溶媒 含有量	発光 効率	駆動 電圧	半減 寿命	備考
			(ドーパント:ホスト)						
2-1	DP-1	OC-29	1:6	◎	76	118	78	170	本発明
2-2	DP-1	OC-29	1:8	◎	85	115	80	165	本発明
2-3	比較 1	OC-29	1:9	△	100	100	100	100	比較例
2-4	比較 1	OC-29	1:8	×	103	99	98	94	比較例

[0280] 表 2 に示すとおり、本発明のサンプル 2－1，2－2 は、比較例のサンプル 2－3，2－4 と比較して、素子材料の析出、溶媒含有量、発光効率、駆動電圧および寿命において、優れていることが明らかである。

産業上の利用可能性

[0281] 本発明は、発光ドーパント同士の凝集・結晶化を抑制し、駆動電圧、発光効率、発光寿命および溶解性に優れた有機 EL 素子を提供するのに、特に好適に利用することができる。

符号の説明

[0282] 1 支持基板
 2 陽極
 3 正孔注入層
 4 正孔輸送層
 5 発光層
 6 電子輸送層
 7 電子注入層
 8 陰極
 9 封止用接着剤
 10 封止部材
 20 積層体
 100 有機 EL 素子

請求の範囲

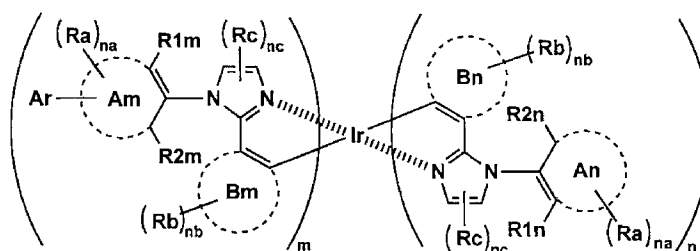
[請求項1]

陽極と陰極との間に、発光層を含む少なくとも1層の有機化合物層が配置された有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記有機化合物層の少なくとも1層が、ウェットプロセスにより成膜され、かつ、一般式(1)で表されるイリジウム錯体と、一般式(A)で表されるホスト化合物と、を含んで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。

[化1]

一般式(1)

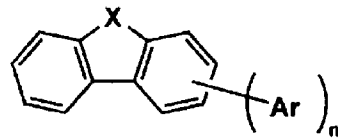


〔一般式(1)中、「環Am」、「環An」、「環Bm」および「環Bn」は5員または6員の芳香族炭化水素環または芳香族複素環を表し、「Ar」は芳香族炭化水素環、芳香族複素環、非芳香族炭化水素環または非芳香族複素環を表す。「R1m」、「R2m」、「R1n」および「R2n」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「Ra」、「Rb」および「Rc」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよく、「Ra」は「Ar」と環を形成していてもよい。 n_a は1～3の整数を表し、 n_b は1～4の整数を表し、 n_c は1または2を表す。 m は1または2を表し、 n は1または2を表し、 $m+n$ は3である。なお、Irに配位している3つの配位

子の構造がすべて同じであることはない。]

[化2]

一般式 (A)



〔一般式 (A) 中、「X」はNR'、O、S、CR'R'' またはSiR'R''を表す。R' およびR'' は各々水素原子または置換基を表す。「Ar」は芳香環を表す。nは0～8の整数を表す。〕

[請求項2]

請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、
前記一般式 (1) の環B_nがベンゼン環であ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3]

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において、

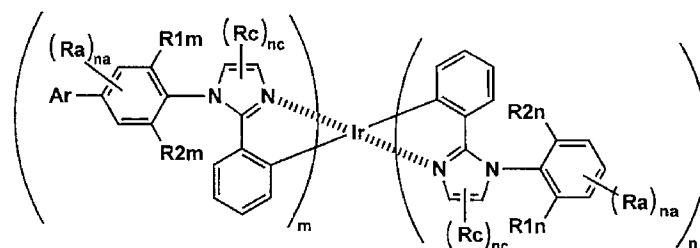
前記一般式 (1) の環B_mがベンゼン環であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項4]

請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、
前記一般式 (1) で表されるイリジウム錯体が、下記一般式 (2) で表され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。

[化3]

一般式(2)



〔一般式 (2) 中、「Ar」は芳香族炭化水素環、芳香族複素環、非芳香族炭化水素環または非芳香族複素環を表す。「R1m」, 「R2m」, 「R1n」および「R2n」はそれぞれ独立に炭素数2以上の

アルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「R a」および「R c」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよく、「R a」は「A r」と環を形成していてもよい。 n_a は1～3の整数を表し、 n_c は1または2を表す。 m は1または2を表し、 n は1または2を表し、 $m+n$ は3である。なお、I rに配位している3つの配位子の構造がすべて同じであることはない。]

[請求項5] 請求項1～4のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

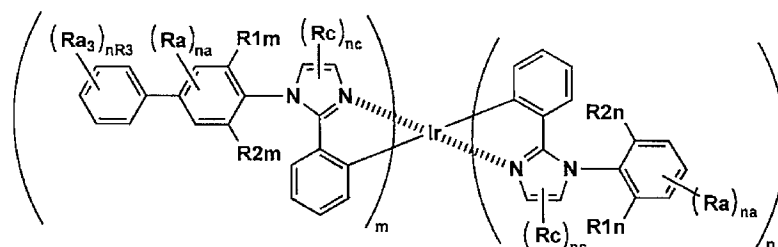
前記一般式(1)または(2)のA rがベンゼン環であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項6] 請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記一般式(1)で表されるイリジウム錯体が、下記一般式(3)で表され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。

[化4]

一般式(3)



〔一般式(3)中、「R 1 m」、「R 2 m」、「R 1 n」および「R 2 n」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「R a」、「R c」お

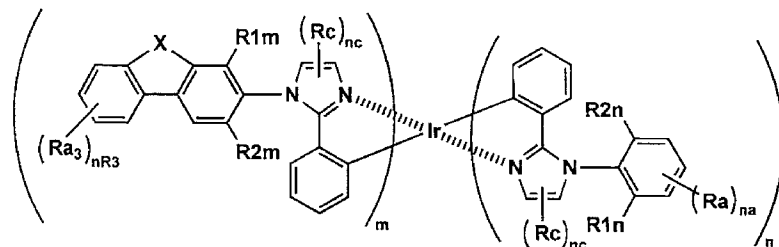
よび「 R_{a3} 」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。 n_a は1～3の整数を表し、 n_c は1または2を表し、 n_{R3} は1～5の整数を表す。 m は1または2を表し、 n は1または2を表し、 $m+n$ は3である。なお、 Ir に配位している3つの配位子の構造がすべて同じであることはない。]

[請求項7]

請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(1)で表されるイリジウム錯体が、下記一般式(4)で表され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。

[化5]

一般式(4)



[一般式(4)中、「 R_{1m} 」、「 R_{2m} 」、「 R_{1n} 」および「 R_{2n} 」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「 R_a 」、「 R_c 」および「 R_{a3} 」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。 n_a は1～3の整数を表し、 n_c は1または2を表し、 n_{R3} は1～4の整数を表す。「 X 」はO, S, Si, R_{z1}, R_{z2}, NR_{z1}またはCR_{z1}R_{z2}を表し、R_{z1}およびR_{z2}

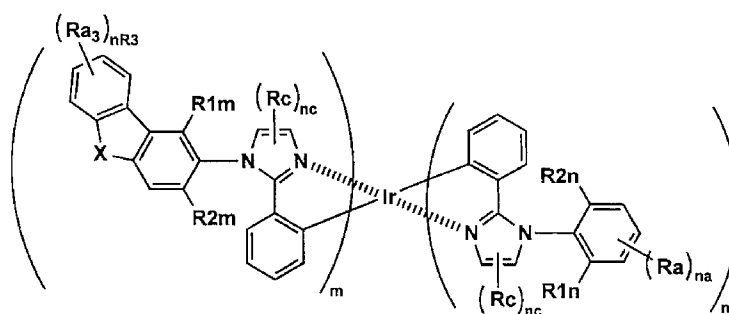
2はアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表す。mは1または2を表し、nは1または2を表し、m+nは3である。]

[請求項8]

請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式(1)で表されるイリジウム錯体が、下記一般式(5)で表され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。

[化6]

一般式(5)



[一般式(5)中、「R1m」、「R2m」、「R1n」および「R2n」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「Ra」、「Rc」および「Ra3」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。naは1～3の整数を表し、ncは1または2を表し、nR3は1～4の整数を表す。「X」はO、S、SiRz1Rz2、NRz1またはCRz1Rz2を表し、Rz1およびRz2はアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表す。mは1または2を表し、nは1または2を表し、m+nは3である。]

[請求項9]

請求項1～8のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセン

ス素子において、

前記一般式（１）の R_1^n および R_2^n が共に炭素原子数２以上のアルキル基またはシクロアルキル基であ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10] 請求項１～９のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記一般式（１）の R_1^m および R_2^m が共に炭素原子数２以上のアルキル基またはシクロアルキル基であ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11] 請求項１～１０のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記一般式（１）の R_1^n および R_2^n の少なくとも一方が炭素原子数３以上の分岐アルキル基であ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12] 請求項１～１１のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記一般式（１）の R_1^m および R_2^m の少なくとも一方が炭素原子数３以上の分岐アルキル基であ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13] 請求項１～１２のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記一般式（１）の R_1^n 、 R_2^n 、 R_1^m および R_2^m の全てが炭素原子数３以上の分岐アルキル基であ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14] 請求項１～１３のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記一般式（１）の m が２であり、 n が１であ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15] 請求項1～13のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、
前記一般式(1)の m が1であり、 n が2であ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16] 請求項1～15のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、
前記一般式(A)の X が NR' を表し、 R' が水素原子または置換基を表す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17] 請求項1～16のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、
前記一般式(A)の X が NR' を表し、 R' がジベンゾフラン環を有する置換基を表す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18] 請求項1～17のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、
前記一般式(A)が、非対称性分子であ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19] 請求項1～18のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、
白色発光す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20] 請求項19に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、
前記白色発光が、一層の発光層に含まれる前記イリジウム錯体を含む複数の発光材料からの発光であ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21] 請求項1～20のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、
前記イリジウム錯体と前記ホスト化合物との混合モル比が1：3～

1 : 9であ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22] 請求項1～21のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記イリジウム錯体中には、配位子の配位比率が互いに異なる2種のイリジウム錯体が含まれ、それらイリジウム錯体の混合モル比が99.95 : 0.05～99.50 : 0.50であ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23] 請求項1～22のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備することを特徴とする表示装置。

[請求項24] 請求項1～22のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備することを特徴とする照明装置。

[請求項25] 陽極と陰極との間に、発光層を含む少なくとも1層の有機化合物層が配置された有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、

前記有機化合物層の少なくとも1層の構成材料を含む塗布液を調製する工程と、

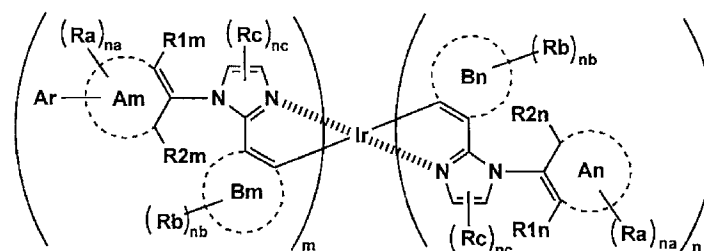
前記塗布液をウェットプロセスにより成膜する工程と、

を備え、

前記塗布液には、一般式(1)で表されるイリジウム錯体と、一般式(A)で表されるホスト化合物と、が含まれ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の製造方法。

[化7]

一般式(1)

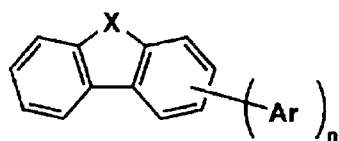


〔一般式(1)中、「環Am」、「環An」、「環Bm」および「環

B_n」は5員または6員の芳香族炭化水素環または芳香族複素環を表し、「Ar」は芳香族炭化水素環、芳香族複素環、非芳香族炭化水素環または非芳香族複素環を表す。「R_{1m}」, 「R_{2m}」, 「R_{1n}」および「R_{2n}」はそれぞれ独立に炭素数2以上のアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよい。「Ra」, 「Rb」および「Rc」はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アミノ基、シリル基、アリールアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、非芳香族炭化水素環基または非芳香族複素環基を表し、さらに置換基を有していてもよく、「Ra」は「Ar」と環を形成していてもよい。n_aは1～3の整数を表し、n_bは1～4の整数を表し、n_cは1または2を表す。mは1または2を表し、nは1または2を表し、m+nは3である。なお、I_rに配位している3つの配位子の構造がすべて同じであることはない。]

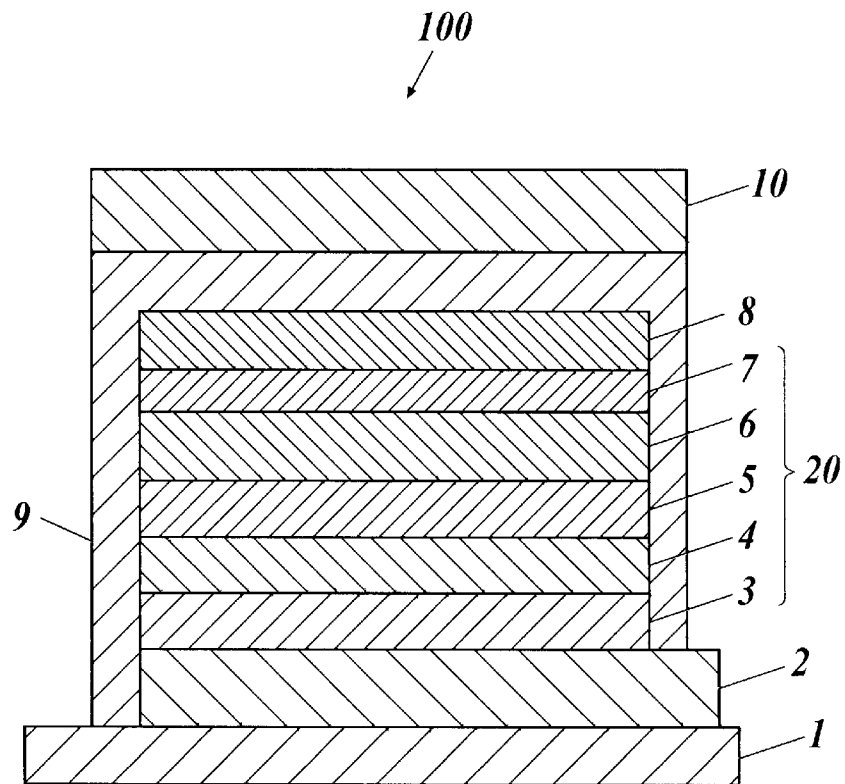
[化8]

一般式(A)



〔一般式(A)中、「X」はNR', O, S, CR' R'' またはSi R' R''を表す。R' およびR'' は各々水素原子または置換基を表す。「Ar」は芳香環を表す。nは0～8の整数を表す。〕

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/061538

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, G09F9/30(2006.01)i, H01L27/32(2006.01)i, H05B33/10(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L51/50, C09K11/06, G09F9/30, H01L27/32, H05B33/10

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

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

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2011/0204333 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORP.), 25 August 2011 (25.08.2011),	1-5, 7, 9-16, 25
Y	paragraphs [0049], [0065], [0069], compounds 73	17-24
A	to 82; paragraphs [0084] to [0085] & EP 2539913 A & WO 2011/106344 A1 & TW 201139612 A & CN 102770935 A	6, 8
Y	WO 2009/084413 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 09 July 2009 (09.07.2009), paragraphs [0045] to [0068] (Family: none)	17-18

☒ 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
28 June, 2013 (28.06.13)

Date of mailing of the international search report
09 July, 2013 (09.07.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/061538

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2009/060757 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 14 May 2009 (14.05.2009), claims 1 to 22 (Family: none)	19-24
A	US 2011/0057559 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORP.), 10 March 2011 (10.03.2011), paragraph [0061], compounds 47 to 69 (Family: none)	1-25
P,X	JP 2013-48192 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 07 March 2013 (07.03.2013), paragraph [0063], DP-15; paragraph [0087], OC-14; paragraph [0088], OC-23; paragraphs [0275] to [0278], [0287] to [0290], [0314] to [0317] (Family: none)	1-6, 9-25
E,Y	WO 2013/058098 A1 (Konica Minolta, Inc.), 25 April 2013 (25.04.2013), paragraph [0034], DP-15 (Family: none)	1-25

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01L51/50 (2006.01)i, C09K11/06 (2006.01)i, G09F9/30 (2006.01)i, H01L27/32 (2006.01)i, H05B33/10 (2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01L51/50, C09K11/06, G09F9/30, H01L27/32, H05B33/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 年

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

CAplus/REGISTRY (STN)

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	US 2011/0204333 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION) 2011.08.25, 段落[0049], [0065], [0069]Compound 73-82, [0084]-[0085]	1-5, 7, 9-16, 25
Y	& EP 2539913 A & WO 2011/106344 A1 & TW 201139612 A	17-24
A	& CN 102770935 A	6, 8
Y	WO 2009/084413 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2009.07.09, 段落 [0045] - [0068] (ファミリーなし)	17-18

☒ 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 8 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

0 9 . 0 7 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

濱野 隆

2 0

9 1 0 8

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

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2009/060757 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2009.05.14, 請求の範囲[1]-[22] (ファミリーなし)	19-24
A	US 2011/0057559 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION) 2011.03.10, 段落[0061] Compound 47-69 (ファミリーなし)	1-25
P, X	JP 2013-48192 A (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2013.03.07, 段落【0063】DP-15, 【0087】OC-14, 【0088】OC-23, 【0275】-【0278】, 【0287】-【0290】, 【0314】-【0317】 (ファミリーなし)	1-6, 9-25
E, Y	WO 2013/058098 A1 (コニカミノルタ株式会社) 2013.04.25, 段落 [0034] DP-15 (ファミリーなし)	1-25