

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2006年9月28日 (28.09.2006)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2006/100925 A1

- (51) 国際特許分類:
C09K 11/06 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01) 株式会社内 Tokyo (JP). 加藤 栄作 (KATO, Eisaku) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2970 番地 コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/304553
- (22) 国際出願日: 2006年3月9日 (09.03.2006)
- (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2005-081838 2005年3月22日 (22.03.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタホールディングス株式会社 (KONICA MINOLTA HOLDINGS, INC.) [JP/JP]; 〒1000005 東京都千代田区丸の内 1丁目6番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 関根 昇 (SEKINE, Noboru) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2970 番地 コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 押山 智寛 (OSHIYAMA, Tomohiro) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2970 番地 コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 西関 雅人 (NISHIZEKI, Masato) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2970 番地 コニカミノルタテクノロジーセンター
- (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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: MATERIAL FOR ORGANIC EL DEVICE, ORGANIC EL DEVICE, DISPLAY AND ILLUMINATING DEVICE

(54) 発明の名称: 有機EL素子用材料、有機EL素子、表示装置及び照明装置

(57) Abstract: Disclosed is a material for organic EL devices which has high synthesis yield, high luminous efficiency and long emission life. Also disclosed are an organic EL device using such a material, and a display and an illuminating device respectively using such an organic EL device.

(57) 要約: 本発明は、合成収率と発光効率が高く、発光寿命の長い有機EL素子用材料及びこれを用いた有機EL素子、該有機EL素子を用いた表示装置及び照明装置を提供する。



WO 2006/100925 A1

明 細 書

有機EL素子用材料、有機EL素子、表示装置及び照明装置

技術分野

[0001] 本発明は、有機EL素子用材料、及びこれを用いた有機EL素子、表示装置及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、ELディスプレイ(以下、ELDという)がある。ELDの構成要素としては、無機EL素子や有機EL素子が挙げられる。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。有機EL素子は発光する化合物を含有する発光層が陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、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・燐光)を利用して発光する素子であり、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、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。

[0003] しかしながら、今後の実用化に向けた有機EL素子においては、さらに低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機EL素子の開発が望まれている。

[0004] 特許第3093796号公報では、スチルベン誘導体、ジスチルルアリーレン誘導体またはトリスチルルアリーレン誘導体に微量の蛍光体をドーブし、発光輝度の向上、有機EL素子の長寿命化を達成している。

[0005] また、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドーブした有機発光層を有する有機EL素子(例えば、特開昭63-264692号公報)、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリドン系色素をドーブした有機発光層を有する有機EL素子(例えば、特開平3-255190号公報)等が知られている。

[0006] 以上のように励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の生成確率が25%であり、光の取り出し効

- 率が約20%であるため、外部取り出し量子効率(η_{ext})の限界は5%とされている。
- [0007] ところが、プリンストン大より励起三重項からの燐光発光を用いる有機EL素子の報告(M. A. Baldo et al., Nature, 395巻, 151~154頁(1998年))がされて以来、室温で燐光を示す材料の研究が活発になってきている。例えば、M. A. Baldo et al., Nature, 403巻, 17号, 750~753頁(2000年)、また米国特許第6,097,147号明細書等にも開示されている。
- [0008] 励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られる可能性があることから照明用途としても注目されている。
- [0009] 例えば、S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻, 4304頁(2001年)等においては、多くの化合物がイリジウム錯体系等重金属錯体を中心に合成検討されている。
- [0010] また、前述のM. A. Baldo et al., Nature, 403巻, 17号, 750~753頁(2000年)においては、ドーパントとしてトリス(2-フェニルピリジン)イリジウムを用いた検討がされている。
- [0011] その他、M. E. Tompson等はThe 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence(EL'00、浜松)において、ドーパントとして $\text{Ir}(\text{acac})_2$ 、例えば、 $(\text{ppy})_2\text{Ir}(\text{acac})$ を、またMoon-Jae Youn, Og, Tetsuo Tsutsui等はやはりThe 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence(EL'00、浜松)において、ドーパントとして、トリス(2-(p-トリル)ピリジン)イリジウム($\text{Ir}(\text{ptpy})_3$)、トリス(ベンゾ[h]キノリン)イリジウム($\text{Ir}(\text{bzq})_3$)等を用いた検討を行っている。なおこれらの金属錯体は一般にオルトメタル化イリジウム錯体と呼ばれている。
- [0012] また、前記S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻, 4304頁(2001年)等においても、各種イリジウム錯体を用いて有機EL素子化する試みがされている。
- [0013] また、高い発光効率を得るために、The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence(EL'00、浜松)では、Ikai等

はホール輸送性の化合物を燐光性化合物のホストとして用いている。また、M. E. Thompson等は各種電子輸送性材料を燐光性化合物のホストとして、これらに新規なイリジウム錯体をドーピングして用いている。

[0014] 中心金属をイリジウムの代わりに白金としたオルトメタル化錯体も注目されている。この種の錯体に関しては、配位子に特徴を持たせた例が多数知られている(例えば、特許文献1～7参照。)

[0015] 何れの場合も主にフェニルピリジン等、二つの配位原子によって中心金属に結合する二座配位子及びその誘導体がオルトメタル化錯体の好適な例として用いられてきた。しかしこれらを発光素子とした場合の発光輝度や発光効率、その発光する光が燐光に由来することから、従来の有機EL素子に比べ大幅に改良されるものであるが、有機EL素子の発光寿命については従来の有機EL素子よりも低いことが知られている。

[0016] 近年、三つの配位原子を有する三座配位子を用いた白金錯体及びイリジウム錯体が報告されている(例えば、特許文献8、9及び非特許文献1参照。)。しかしながらこれら有機EL素子の発光特性はいまだ不十分であり、実用化に耐えうる、さらに高特性なりん光発光材料を用いた有機EL素子の開発が望まれていた。

特許文献1:特開2001-181617号公報

特許文献2:特開2001-247859号公報

特許文献3:特開2002-332291号公報

特許文献4:特開2002-332292号公報

特許文献5:特開2002-338588号公報

特許文献6:特開2002-226495号公報

特許文献7:特開2002-234894号公報

特許文献8:特開2003-73355号公報

特許文献9:国際公開第04/39781号パンフレット

非特許文献1:Inorganic Chemistry, 第43巻, 第21号, 6513～6515頁(2004年)

発明の開示

発明が解決しようとする課題

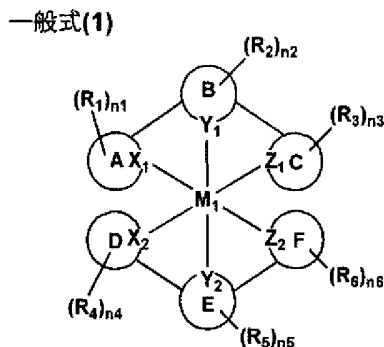
[0017] 本発明の目的は、合成収率と発光効率が高く、発光寿命の長い有機EL素子用材料及びこれを用いた有機EL素子、該有機EL素子を用いた表示装置及び照明装置を提供することである。

課題を解決するための手段

[0018] 本発明の上記目的は、下記構成により達成された。

[0019] 1. 下記一般式(1)で表される金属錯体であって、配位子部分に二座配位を抑制する置換基を少なくとも一つ有することを特徴とする有機EL素子用材料。

[0020] [化1]



[0021] (式中、 M_1 は金属である。 $X_1, Y_1, Z_1, X_2, Y_2, Z_2$ は炭素原子または窒素原子であり、 (X_1, Y_1, Z_1) または (X_2, Y_2, Z_2) の組み合わせのうち少なくとも一つは炭素原子であり、それぞれ環A～環Fの構成要素の一部であるとともに金属 M_1 に結合している。 $R_1 \sim R_6$ は置換基であり、 $n_1 \sim n_6$ は0または1以上の整数である。)

2. 前記一般式(1)において、(環A、環B、環C)または(環D、環E、環F)の組み合わせのうち、それぞれ少なくとも一つの環に炭素原子で結合した置換基を有することを特徴とする前記1に記載の有機EL素子用材料。

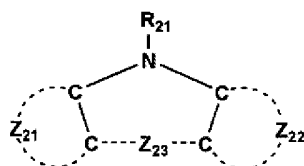
[0022] 3. 前記一般式(1)において、環B及び環Eがファンデルワールス体積(VDW)が 30 \AA^3 以上の置換基を少なくとも一つ有することを特徴とする前記1または2に記載の有機EL素子用材料。

[0023] 4. 前記一般式(1)において、環Bの置換基 R_2 の少なくとも一つがファンデルワールス体積(VDW)が 55 \AA^3 以上であることを特徴とする前記1～3のいずれか1項に記載

の有機EL素子用材料。

- [0024] 5. 前記一般式(1)において、環A～環Fのうち少なくとも一つは5員環構造を有することを特徴とする前記1～4のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料。
- [0025] 6. 前記金属M₁はIr、RhまたはOsであることを特徴とする前記1～5のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料。
- [0026] 7. 前記一般式(1)で表される金属錯体が高分子の主鎖または側鎖の一部であることを特徴とする前記1～6のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料。
- [0027] 8. 前記1～7のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料を有機EL素子を形成する構成層の一つに含有することを特徴とする有機EL素子。
- [0028] 9. 前記構成層の一つが発光層であり、該発光層に前記1～7のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料を含有することを特徴とする前記8に記載の有機EL素子。
- [0029] 10. 前記構成層の少なくとも一層が、下記一般式(2)で表される化合物を含有することを特徴とする前記8または9に記載の有機EL素子。
- [0030] [化2]

一般式(2)



- [0031] (式中、Z₂₁は芳香族複素環を形成する原子群を表し、Z₂₂は芳香族複素環または芳香族炭化水素環を形成する原子群を表し、Z₂₃は2価の連結基または単なる結合手を表す。R₂₁は水素原子または置換基を表す。)

11. 前記8～10のいずれか1項に記載の有機EL素子を有することを特徴とする表示装置。

- [0032] 12. 前記8～10のいずれか1項に記載の有機EL素子を有することを特徴とする照明装置。

発明の効果

- [0033] 本発明により、合成収率と発光効率が高く、発光寿命の長い有機EL素子用材料及

びこれを用いた有機EL素子、該有機EL素子を用いた表示装置及び照明装置を提供することができた。

図面の簡単な説明

[0034] [図1]有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

[図2]表示部Aの模式図である。

[図3]画素を構成する駆動回路の等価回路図である。

[図4]パンプマトリックス方式による表示装置の模式図である。

[図5]照明装置の概略図である。

[図6]照明装置の模式図である。

符号の説明

- [0035]
- 1 ディスプレイ
 - 3 画素
 - 5 走査線
 - 6 データ線
 - 7 電源ライン
 - 10 有機EL素子
 - 11 スイッチングトランジスタ
 - 12 駆動トランジスタ
 - 13 コンデンサ
 - A 表示部
 - B 制御部
 - 102 ガラスカバー
 - 105 陰極
 - 106 有機EL層
 - 107 透明電極付きガラス基板
 - 108 窒素ガス
 - 109 捕水剤

発明を実施するための最良の形態

- [0036] 本発明の有機EL素子用材料は、6配位の中心金属と三座で結合可能な三座配位子を二つ有することで完成構造を示すことを特徴とする。該三座配位子は3つの環を有し、それぞれの環は直接結合されている。このような三座配位子は、これまで用いられてきたフェニルピリジンのような二座配位子に比べ中心金属との結合手が多いため、金属、配位子間のエネルギー移動が容易になり、高効率な発光が可能になる。またさらには錯体形成に伴う、より大きな安定化エネルギーを得ることができる。
- [0037] 本発明においては、請求の範囲第1項～7項のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料を用い、請求の範囲第1項～第10項のいずれか1項に記載の構成により、合成収率と発光効率が高く、発光寿命の長い有機EL素子を得ることができた。
- [0038] 本発明者等は上記の問題点について鋭意検討を行った結果、これまで多方面で検討されてきた二座配位子に代えて、前記一般式(1)で表されるように6配位の中心金属と二つの三座配位子によって完成構造をなす金属錯体を用いることで、発光効率が高く、しかも発光寿命が大幅に改善される有機EL素子用材料を提供できることを見出した。
- [0039] 一般式(1)において、配位原子はそれぞれの三座配位子で3つずつ存在するが、炭素－金属結合は金属錯体の安定性を向上させるため、それぞれ少なくとも一つの配位原子は炭素原子であることを特徴とする。
- [0040] このとき配位子は金属錯体の合成収率向上のため二座配位を抑制する置換基を有することを特徴とする。このような置換基は、二つの三座配位子のうち一方の三座配位子にのみあってもよいが、さらなる合成収率向上のために両方の配位子にこのような置換基を有することが好ましい。この置換基は、三座配位子の中央の環である環Bあるいは環Eに炭素原子で結合した置換基であることが特に好ましい。置換基はファンデルワールス体積(VDW)が 30 \AA^3 以上であることが好ましく、 $30 \text{ \AA}^3 \sim 250 \text{ \AA}^3$ であることがより好ましく、 $30 \text{ \AA}^3 \sim 200 \text{ \AA}^3$ であることさらに好ましく、 $45 \text{ \AA}^3 \sim 150 \text{ \AA}^3$ であることが最も好ましい。一方の配位子にのみ二座配位を抑制する置換基を有する場合には、さらに嵩高い置換基としてファンデルワールス体積(VDW)が 55 \AA^3 以上であることが好ましく、 $55 \text{ \AA}^3 \sim 450 \text{ \AA}^3$ であることがより好ましく、 $55 \text{ \AA}^3 \sim 250 \text{ \AA}^3$ であることがさらに好ましく、 $55 \text{ \AA}^3 \sim 150 \text{ \AA}^3$ であることが最も好ましい。

- [0041] 三座配位子は環A～環Fの6つの環構造を有し、金属に結合可能な環であれば特に限定されないが、5員あるいは6員の芳香族炭化水素環（芳香族炭素環ともいう）、芳香族複素環（複素芳香環ともいう）あるいは複素環であることが好ましく、特に環B及び環Eは6員環構造を有することがさらに好ましい。また発光波長の調整のために少なくとも一つの環は5員環構造を有することが好ましい。
- [0042] また、有機EL素子用材料は対イオンを有してもよいが、全体として中性であることがさらに好ましい。
- [0043] 中心金属としては、6配位可能であり電界発光が得られるものであれば特に限定されないが、周期表において8族～11族に含まれる遷移金属元素であることが好ましく、Ir、OsまたはRhであることがさらに好ましい。
- [0044] 有機EL素子の作製法は特に限定されないが、湿式によることが好ましく、本発明における金属錯体は高分子鎖の主鎖あるいは側鎖の一部であることが好ましい。
- [0045] 本発明の有機EL素子用材料は、有機EL素子の構成層のいずれかに用いられるが、構成層の一つである発光層に用いられることが好ましい。さらなる高効率発光のために発光層にドーパントとして用いられることが好ましい。このとき、用いる電子輸送層や正孔輸送層、発光ホスト等、他の有機層を構成する材料との適切な組み合わせによって、さらなる高輝度、高効率な発光、さらには有機EL素子の長寿命化が可能である。こうした観点から有機層のうち少なくとも一層に前記一般式(2)で表される化合物を用いることが好ましく、発光ホストまたは正孔阻止材料として用いることがさらに好ましい。
- [0046] 以下、本発明を詳細に説明する。
- [0047] 〔一般式(1)で表される金属錯体〕
本発明の前記一般式(1)で表される金属錯体について説明する。
- [0048] 本発明者等は、これまで多方面で検討されてきた二座配位に代えて、前記一般式(1)で表されるような三座配位を二つ有する金属錯体を用いることで、合成収率と発光効率が高く、しかも発光寿命が大幅に改善される有機EL素子用材料を提供できた。
- [0049] 本発明における三座配位は、二座配位を抑制する置換基を有することが特徴で

あり、特に三座配位子の中央の環である環B及び環Eにはファンデルワールス体積(VDW)が 30 \AA^3 以上である置換基を有ことが好ましく、 $30 \text{ \AA}^3 \sim 250 \text{ \AA}^3$ であることがより好ましく、 $30 \text{ \AA}^3 \sim 200 \text{ \AA}^3$ であることさらにより好ましく、 $45 \text{ \AA}^3 \sim 150 \text{ \AA}^3$ であることが最も好ましい。また、二つの三座配位子の内、一方の配位子にのみ二座配位を抑制する置換基を有する場合には、さらに嵩高い置換基としてファンデルワールス体積(VDW)が 55 \AA^3 以上であることが好ましく、 $55 \text{ \AA}^3 \sim 450 \text{ \AA}^3$ であることがより好ましく、 $55 \text{ \AA}^3 \sim 250 \text{ \AA}^3$ であることがさらにより好ましく、 $55 \text{ \AA}^3 \sim 150 \text{ \AA}^3$ であることが最も好ましい。こうした嵩高い置換基によって金属が該配位子と選択的に三座配位可能になり、望ましくない二座配位錯体の生成を抑止することができる。

[0050] 置換基のファンデルワールス(VDW)体積とは、アクセルリス社製分子シミュレーションソフトCerius2を用いて求められるパラメーターを用いるが、ベンゼン環に置換基を導入し、Dreiding Force Fieldを用いて、MM計算で分子構造を最適化して、Connolly Surfaceを用いて求めたVolume値と定義する。具体的な置換基のファンデルワールス(VDW)体積を下記に示す。

[0051]	置換基	\AA^3
	メチル基	25.4
	エチル基	42.6
	イソプロピル基	59.5
	tert-ブチル基	76.2
	フェニル基	74.9
	メキシ基	34.0
	アミノ基	22.2
	ヒドロキシ基	16.7
	塩素原子	22.4
	臭素原子	26.5
	フッ素原子	13.3
	トリフルオロメチル基	42.5
	トリメチルシリル基	91.9

フェノキシ基 88.9

ジメチルアミノ基 54.6

環A～環Fは芳香族炭化水素環、芳香族複素環または複素環である。

[0052] 環A～環Fを構成する芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、*o*-テルフェニル環、*m*-テルフェニル環、*p*-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンストラアントレン環等が挙げられる。

[0053] 環A～環Fを構成する芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、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。

[0054] $R_1 \sim R_6$ は置換基であり、置換基としては、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*tert*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、アリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基、プロパルギル基等)、アリール基(例えば、フェニル基、ナフチル基等)、芳香族複素環基(例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホルル基、オキサゾリジル基等)、アルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等)、シクロアルコキシル基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキ

シ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等)、アシル基(例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等)、アシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等)、アミド基(例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等)、カルバモイル基(例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド

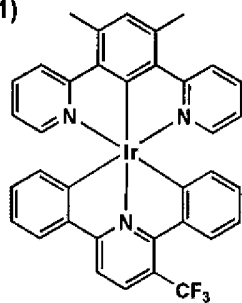
ド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等)、スルフィニル基(例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリールスルホニル基(例えば、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)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。

[0055] $n_1 \sim n_6$ は0または正の整数であり、0~4の整数が好ましい。

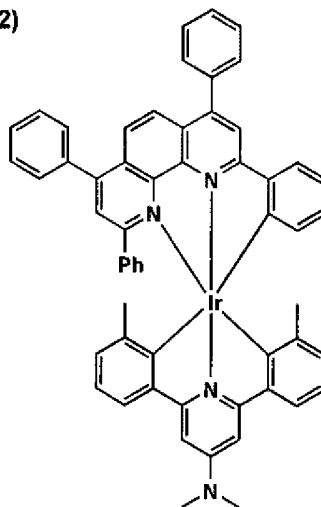
[0056] 以下に、本発明に係る一般式(1)で表される金属錯体の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

[0057] [化3]

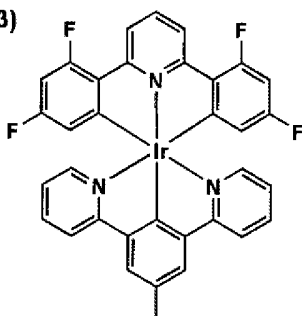
(1-1)



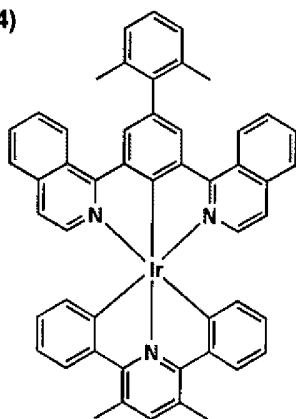
(1-2)



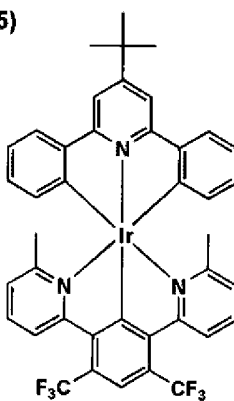
(1-3)



(1-4)

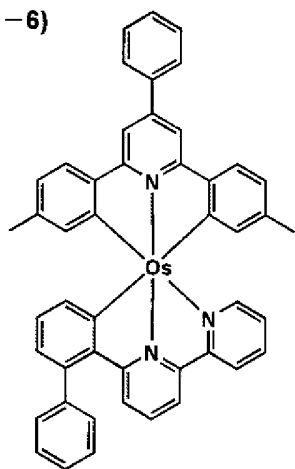


(1-5)

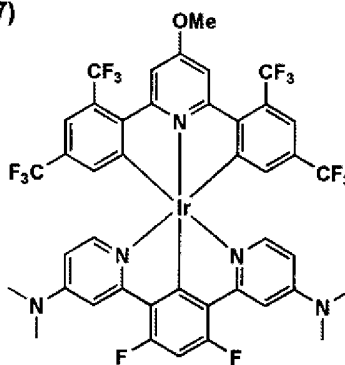


[0058] [化4]

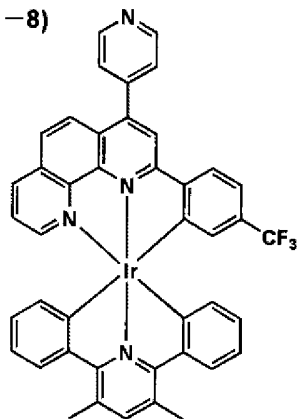
(1-6)



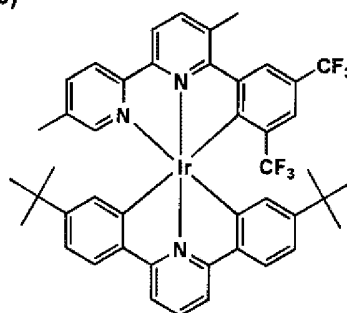
(1-7)



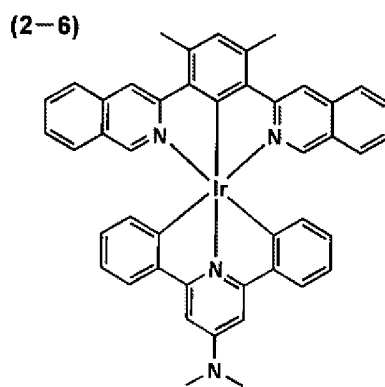
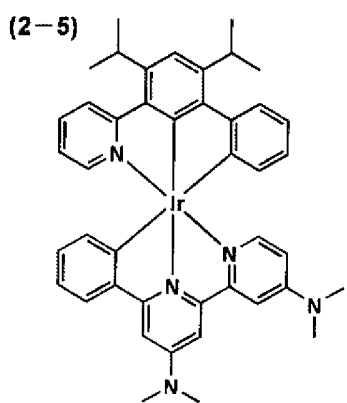
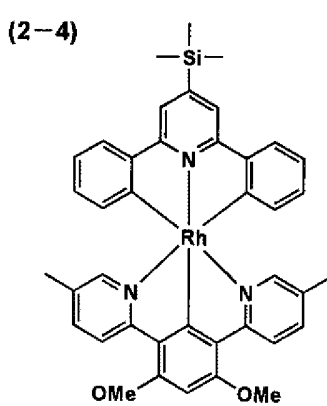
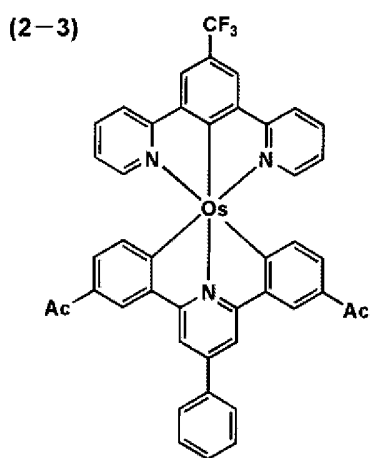
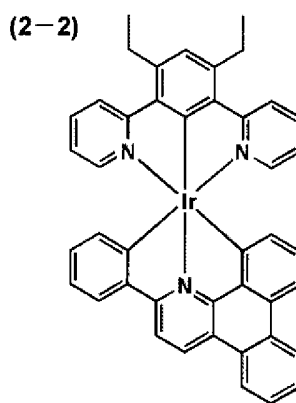
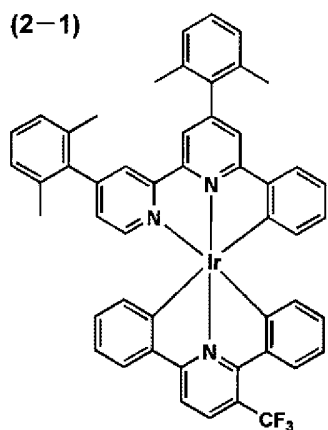
(1-8)



(1-9)

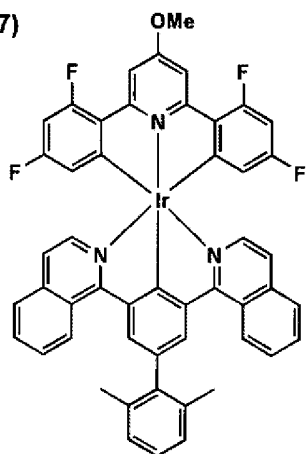


[0059] [化5]

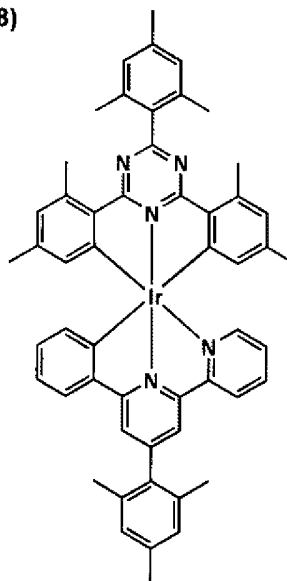


[0060] [化6]

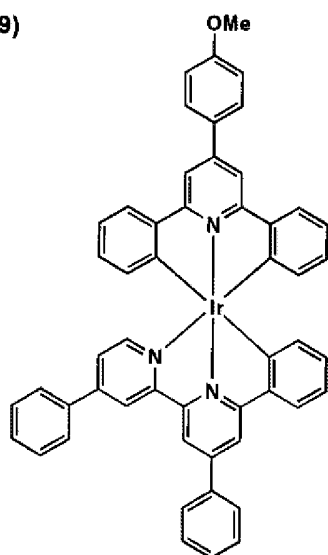
(2-7)



(2-8)

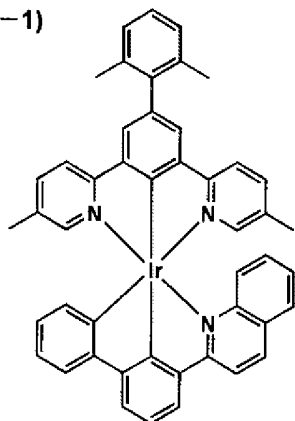


(2-9)

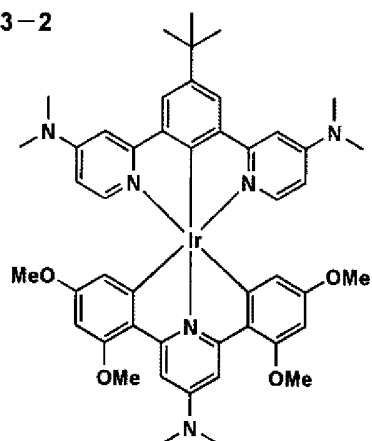


[0061] [化7]

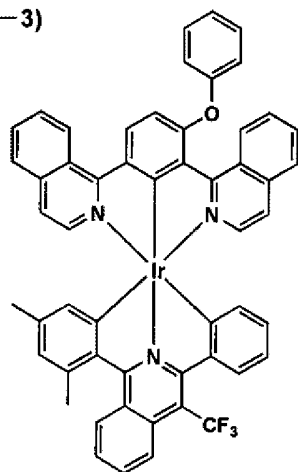
(3-1)



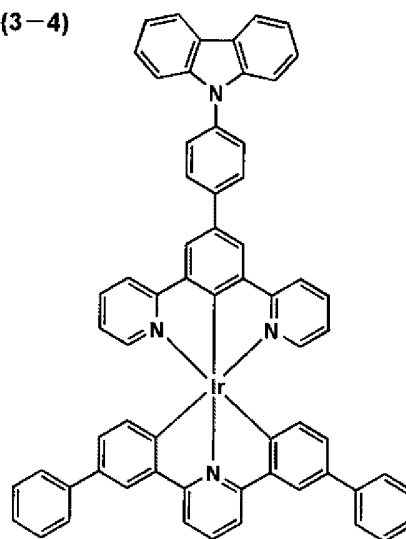
(3-2)



(3-3)

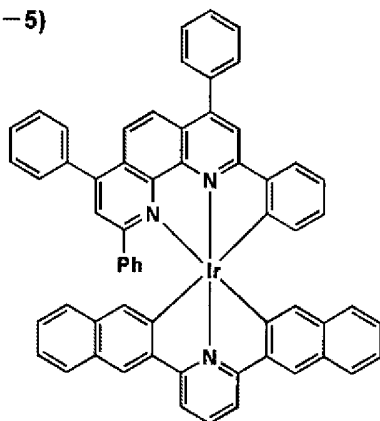


(3-4)

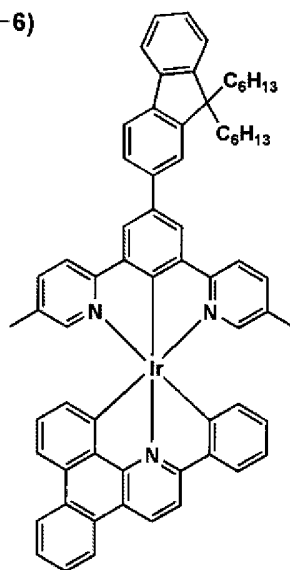


[0062] [化8]

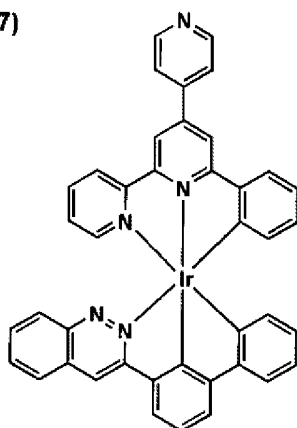
(3-5)



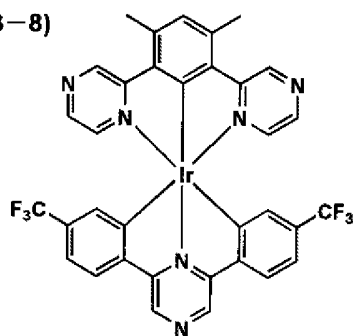
(3-6)



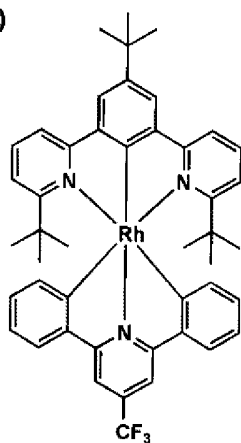
(3-7)



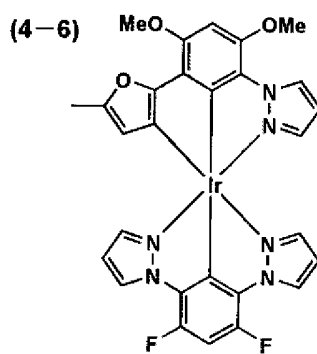
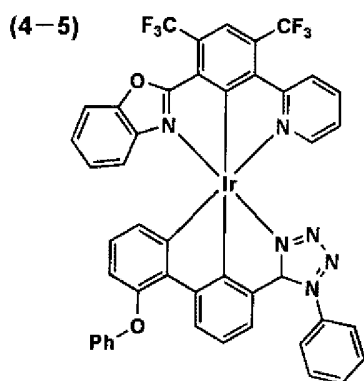
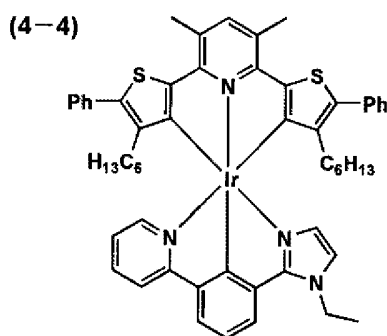
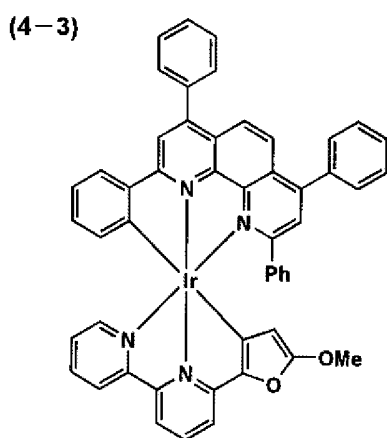
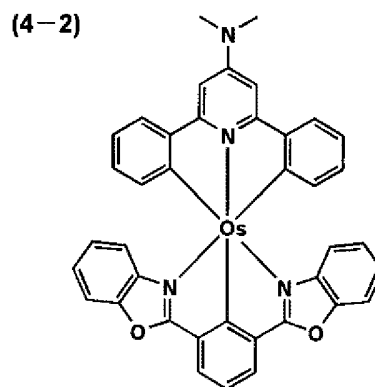
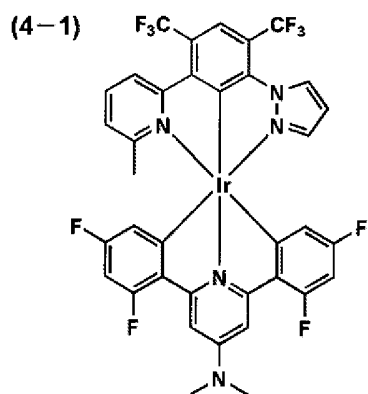
(3-8)



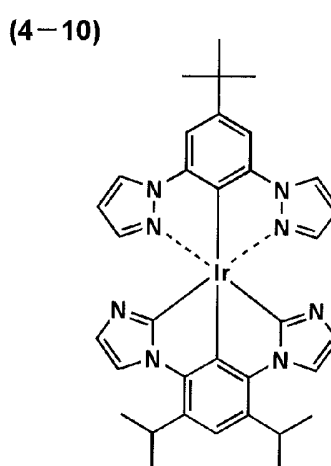
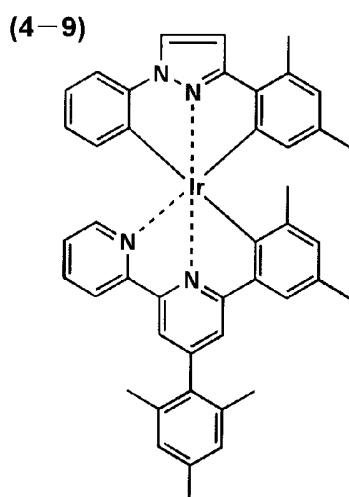
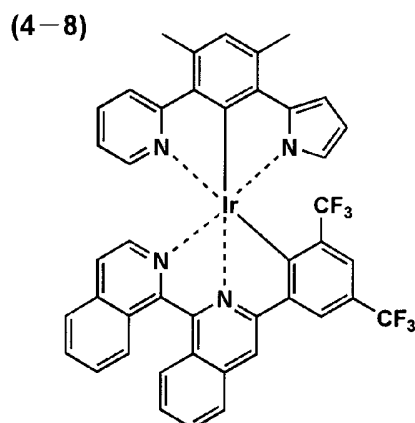
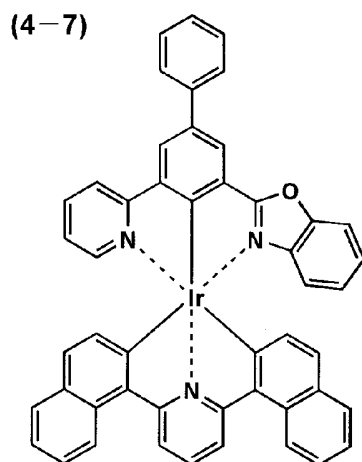
(3-9)



[0063] [化9]



[0064] [化10]



[0065] これらの化合物は、Andrew J. Wilkinson et al. , Inorganic Chemistry, 第43巻, 第21号, 6513~6515頁(2004年)等を参照して合成することができる。

[0066] 本発明に係る一般式(1)で表される化合物は、有機EL素子の構成層(有機層)の少なくとも一層に用いることが好ましい。さらなる発光効率の向上のために構成層の一つが発光層であり、この発光層に一般式(1)で表される化合物をドーパントとして用いることが好ましい。このとき、用いる電子輸送層や正孔輸送層、発光ホスト等、他の有機層を構成する材料との適切な組み合わせによって、さらなる高輝度、高効率な発光、更に、有機EL素子の長寿命化が可能である。

[0067] [有機EL素子材料の有機EL素子への適用]

本発明の有機EL素子材料を用いて、有機EL素子を作製する場合、有機EL素子の構成層(詳細は後述する)の中で、発光層に用いることが好ましい。また、発光層中では上記のように、発光ドーパントとして好ましく用いられる。

[0068] (発光ホストと発光ドーパント)

発光層中の主成分となるホスト化合物である発光ホストに対する発光ドーパントとの混合比は、好ましくは0.1質量%~30質量%未満である。

[0069] ただし、発光ドーパントは複数種の化合物を混合して用いてもよく、混合する相手は構造を異にする、その他の金属錯体やその他の構造を有するリン光性ドーパントや蛍光性ドーパントでもよい。

[0070] ここで、発光ドーパントとして用いられる金属錯体と併用してもよいドーパント(リン光性ドーパント、蛍光性ドーパント等)について述べる。発光ドーパントは、大きく分けて、蛍光を発光する蛍光性ドーパントとリン光を発光するリン光性ドーパントの2種類がある。

[0071] 前者(蛍光性ドーパント)の代表例としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフエン系色素、または希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

[0072] 後者(リン光性ドーパント)の代表例としては、好ましくは元素の周期表で8族~10族の遷移金属元素を含む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化合物が挙げられるが、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

[0073] 具体的には、以下の特許公報に記載されている化合物が挙げられる。

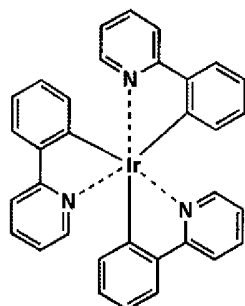
[0074] 国際公開第00/70655号パンフレット、特開2002-280178号公報、同2001-181616号公報、同2002-280179号公報、同2001-181617号公報、同2002-280180号公報、同2001-247859号公報、同2002-299060号公報、同2001-313178号公報、同2002-302671号公報、同2001-345183号公報、同2002-324679号公報、国際公開第02/15645号パンフレット、特開2002-332291号公報、同2002-50484号公報、同2002-332292号公報、同2002-83684号公報、特表2002-540572号公報、特開2002-117978号公報、同200

2-338588号公報、同2002-170684号公報、同2002-352960号公報、国際公開第01/93642号パンフレット、特開2002-50483号公報、同2002-100476号公報、同2002-173674号公報、同2002-359082号公報、同2002-175884号公報、同2002-363552号公報、同2002-184582号公報、同2003-7469号公報、特表2002-525808号公報、特開2003-7471号公報、特表2002-525833号公報、特開2003-31366号公報、同2002-226495号公報、同2002-234894号公報、同2002-235076号公報、同2002-241751号公報、同2001-319779号公報、同2001-319780号公報、同2002-62824号公報、同2002-100474号公報、同2002-203679号公報、同2002-343572号公報、同2002-203678号公報等。

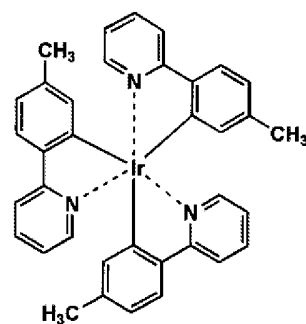
[0075] その具体例の一部を下記に示す。

[0076] [化11]

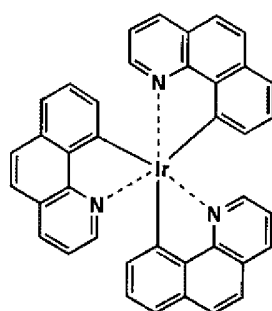
Ir-1



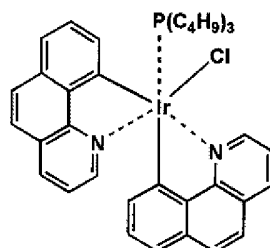
Ir-2



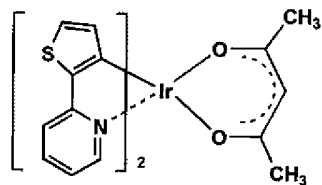
Ir-3



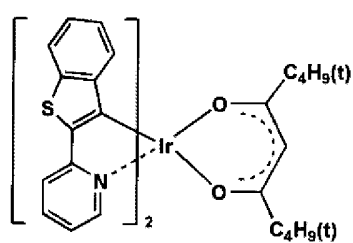
Ir-4



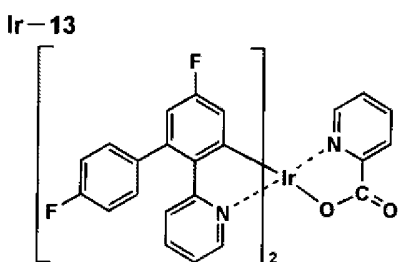
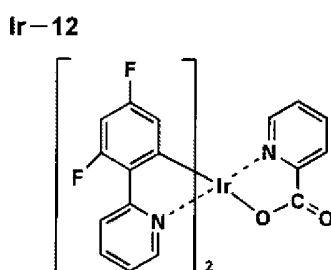
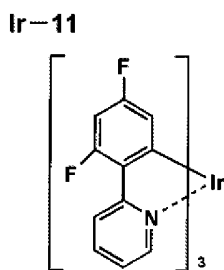
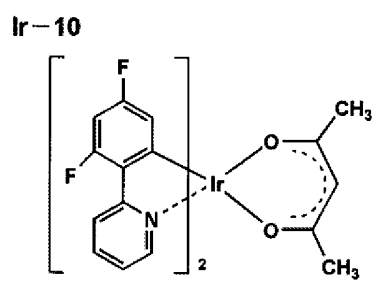
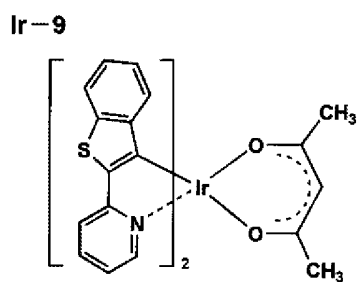
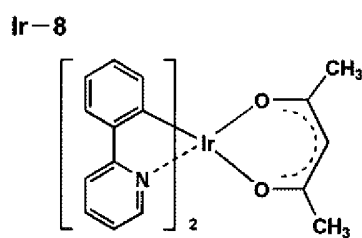
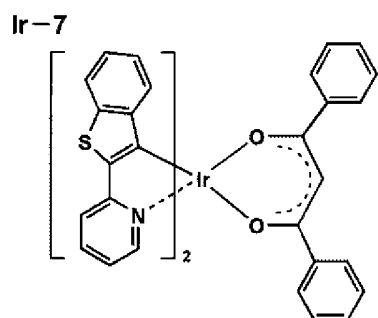
Ir-5



Ir-6

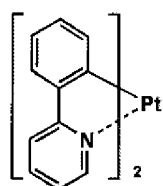


[0077] [化12]

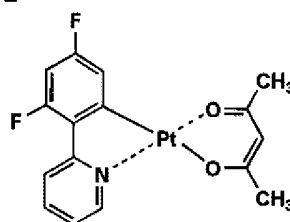


[0078] [化13]

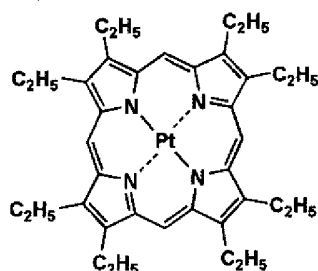
Pt-1



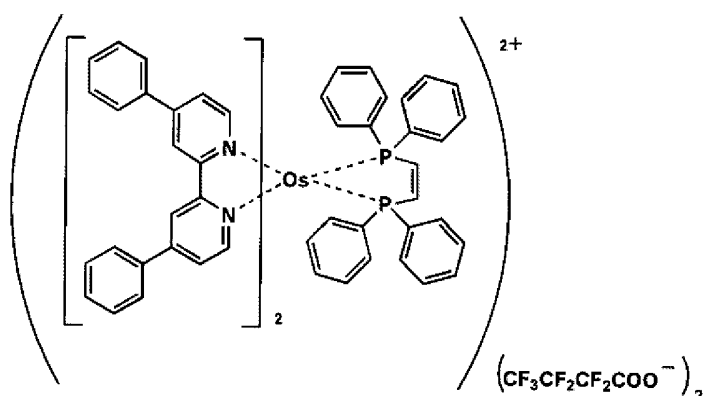
Pt-2



Pt-3



A-1



[0079] (発光ホスト)

ここで、本発明においてホスト化合物とは、発光層に含有される化合物のうちで室温(25℃)においてリン光発光のリン光量子収率が、0.01未満の化合物と定義される。

[0080] 本発明に用いられる発光ホストとしては、併用される発光ドーパントのリン光0-0バンドよりも短波長なリン光0-0バンドを持つ化合物が好ましく、発光ドーパントにそのリン光0-0バンドが480nm以下である青色の発光成分を含む化合物を用いる場合には、発光ホストとしてはリン光0-0バンドが450nm以下であることが好ましい。

[0081] 本発明に係る発光ホストとしては、構造的には特に制限はないが、代表的にはカル

バズール誘導体、トリアリールアミン誘導体、芳香族ボラン誘導体、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し、かつ前記0-0バンドが450nm以下の化合物が好ましい化合物として挙げられる。また、本発明に係る発光ホスト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(蒸着重合性発光ホスト)でもいい。

[0082] 発光ホストとしては、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Tg(ガラス転移温度)である化合物が好ましい。

[0083] 発光ホストの具体例としては、以下の文献に記載されている化合物が好適である。例えば、特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同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。

[0084] 次に、代表的な有機EL素子の構成について述べる。

[0085] [有機EL素子の構成層]

本発明の有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。(1)陽極/発光層/電子輸送層/陰極(2)陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極(3)陽極/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/陰極(4)陽極/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/陰極バッファ層/陰極(5)陽極/陽極バッファ層/正孔輸送層/発光層/正孔

阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極

〔発光層〕

本発明においては、有機EL素子用材料は発光層に用いることが好ましいが、これら以外にも上記のような公知の発光ホストや発光ドーパントを併用してもよい。

- [0086] ここで、本発明の効果をさらに向上させる観点から、発光層が前記一般式(2)で表される化合物を含有することが好ましい。これらの化合物は発光層において発光ホストとして好ましく用いられる。
- [0087] 前記一般式(2)において、 Z_{21} は置換基を有してもよい芳香族複素環を形成する原子群を表し、 Z_{22} は置換基を有してもよい芳香族複素環または芳香族炭化水素環を形成する原子群を表し、 Z_{23} は2価の連結基または単なる結合手を表す。 R_{21} は水素原子または置換基を表す。
- [0088] Z_{21} 、 Z_{22} の原子群から表される芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、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。さらに前記芳香族複素環は、後述する R_{21} で表される置換基を有してもよい。
- [0089] Z_{22} の原子群から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、アンストラアントレン環等が挙げられる。さらに前記芳香族炭化水素環は、後述する R_{21} で表される置換基を有してもよい。
- [0090] R_{21} で表される置換基としては、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*tert*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシ

ル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、アリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基、プロパルギル基等)、アリール基(例えば、フェニル基、ナフチル基等)、芳香族複素環基(例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホルル基、オキサゾリジル基等)、アルコキシ基(例えば、メキシ基、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)、シクロアルコキシル基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジリアミノスルホニル基等)、アシル基(例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等)、アシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等)、アミド基(例えば、メチルカルボニルアミ

ノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等)、カルバモイル基(例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等)、スルフィニル基(例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリールスルホニル基(例えば、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)等が挙げられる。

[0091] 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。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。好ましい置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、フッ化炭化水素基、アリール基、芳香族複素環基

である。

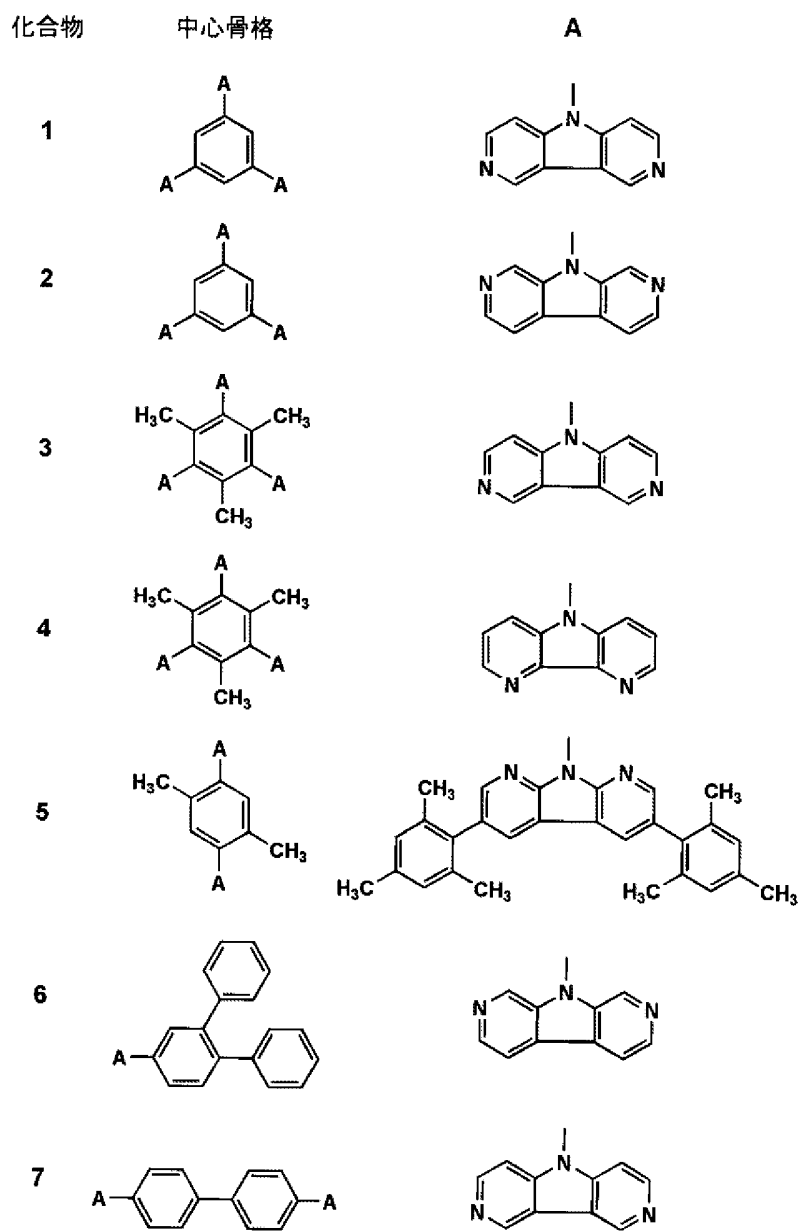
[0092] 2価の連結基としては、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン等の炭化水素基の他、ヘテロ原子を含むものであってもよく、またチオフェン-2, 5-ジイル基やピラジン-2, 3-ジイル基のような芳香族複素環を有する化合物(ヘテロ芳香族化合物ともいう)に由来する2価の連結基であつてもよいし、酸素や硫黄等のカルコゲン原子であつてもよい。また、アルキルイミノ基、ジアルキルシランジイル基やジアリールゲルマンジイル基のようなヘテロ原子を会して連結する基でもよい。

[0093] 単なる結合手とは、連結する置換基同士を直接結合する結合手である。

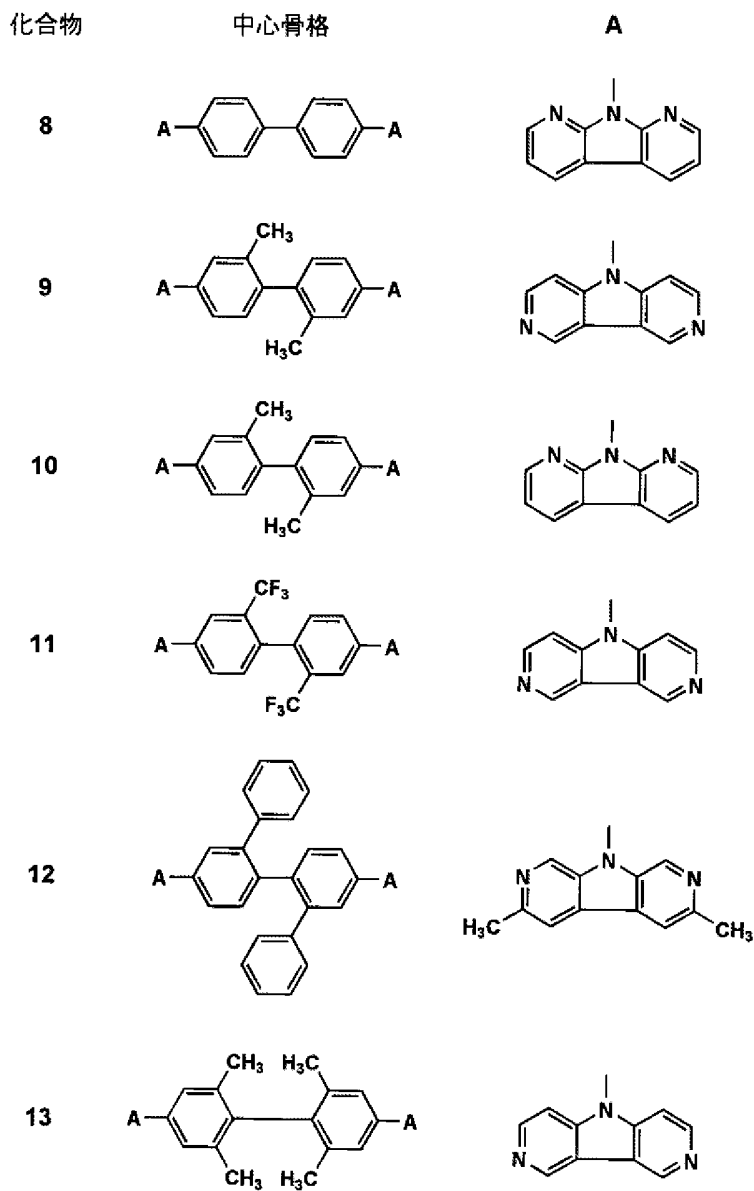
[0094] 本発明においては、前記一般式(2)の Z_{21} が形成する環は6員環であることが好ましい。これにより、より発光効率を高くすることができる。また、本発明においては、 Z_{22} が形成する環は6員環であることが好ましい。これにより、より発光効率を高くすることができる。さらに Z_{21} と Z_{22} を共に6員環とすることで、より一層発光効率と高くすることができるので好ましい。

[0095] 以下に、本発明に係る一般式(2)で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

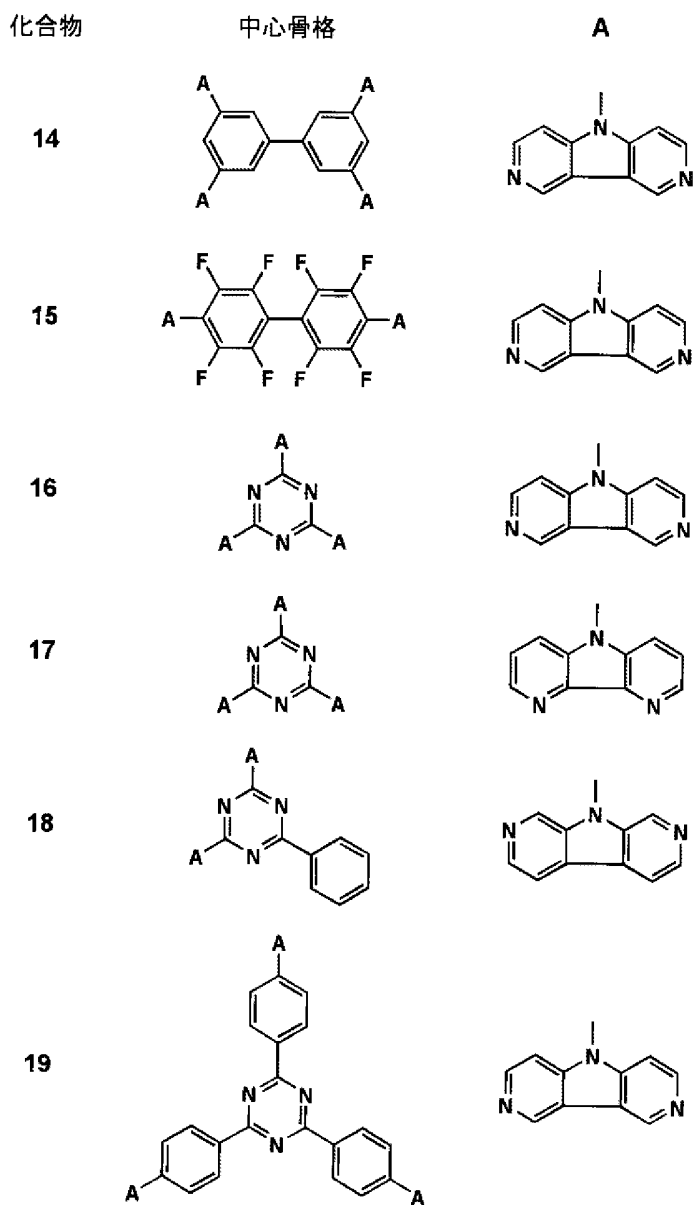
[0096] [化14]



[0097] [化15]



[0098] [化16]



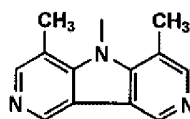
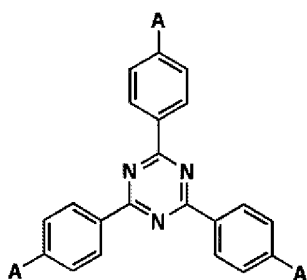
[0099] [化17]

化合物

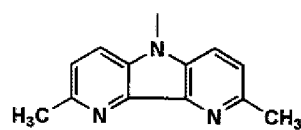
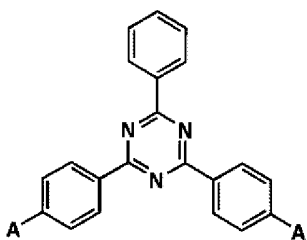
中心骨格

A

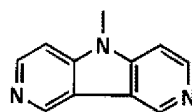
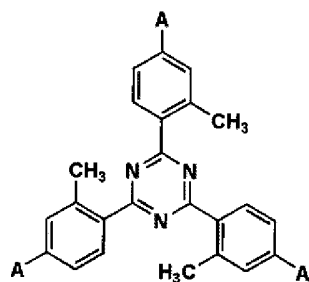
20



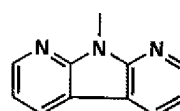
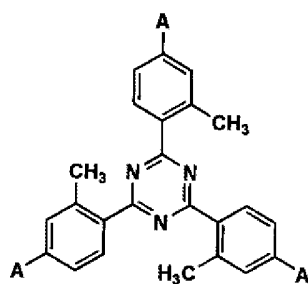
21



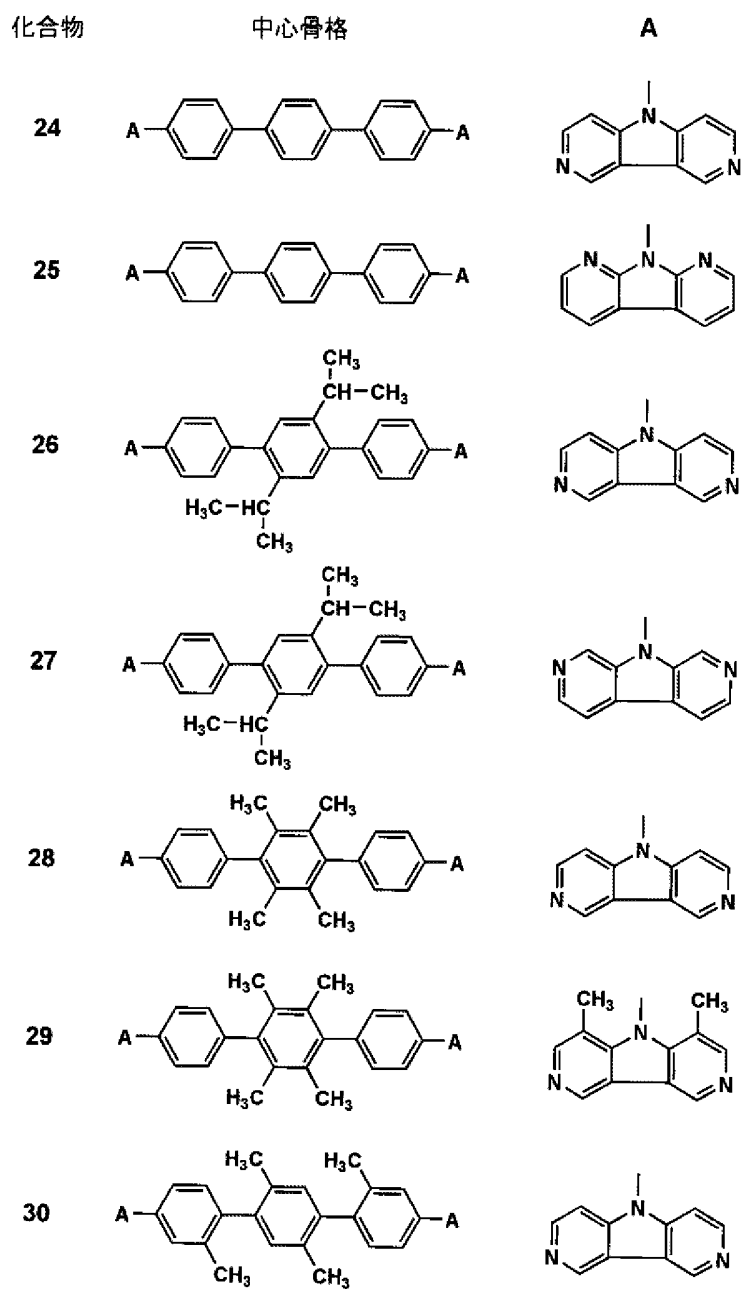
22



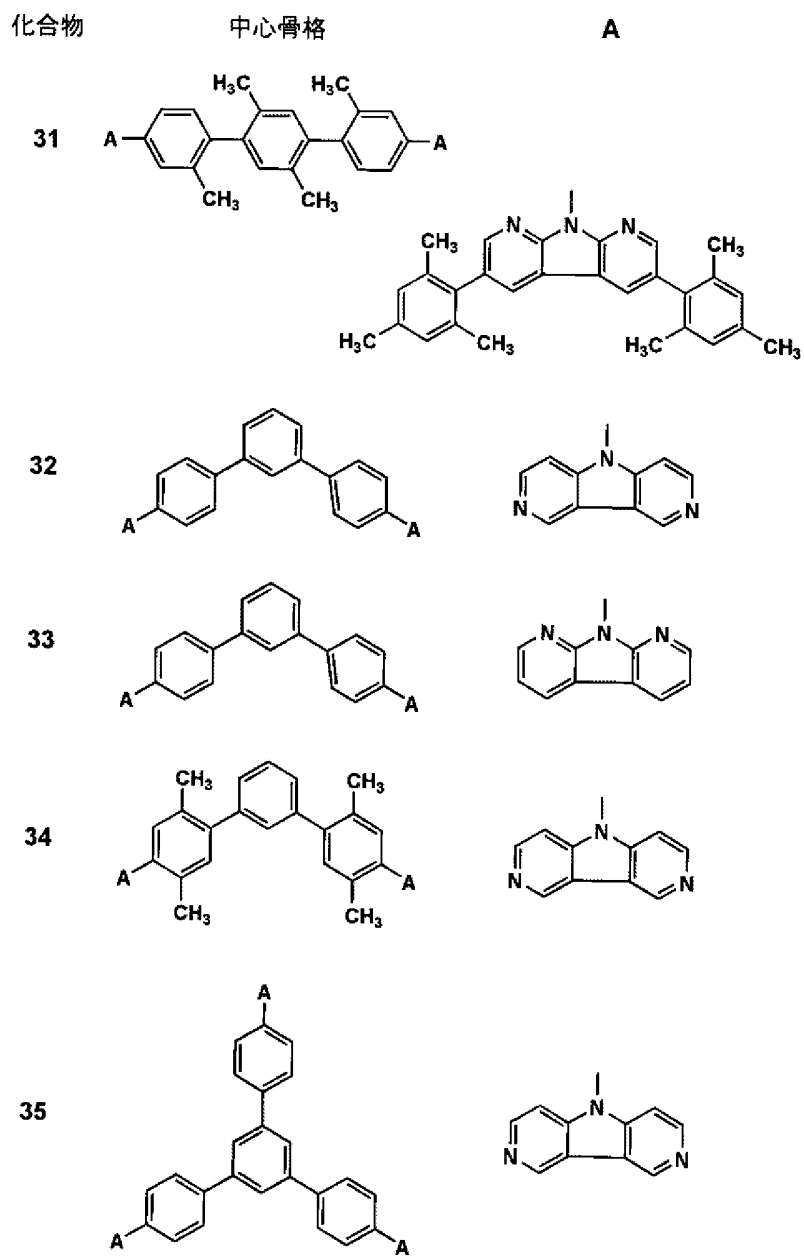
23



[0100] [化18]



[0101] [化19]



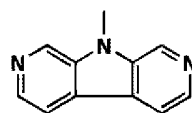
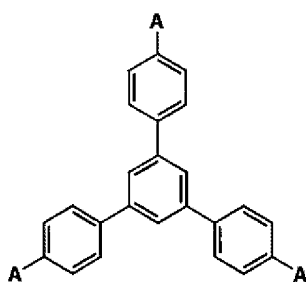
[0102] [化20]

化合物

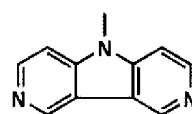
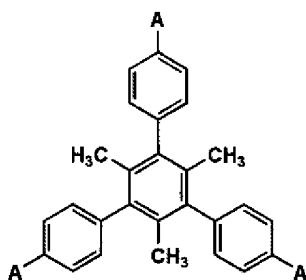
中心骨格

A

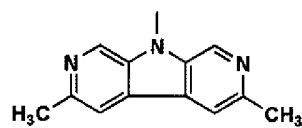
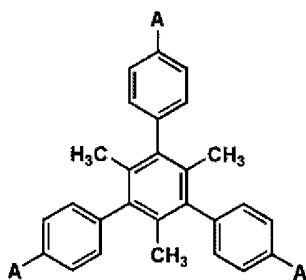
36



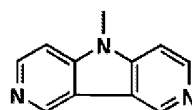
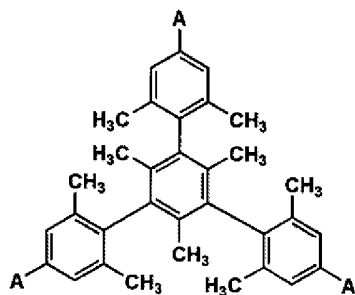
37



38



39

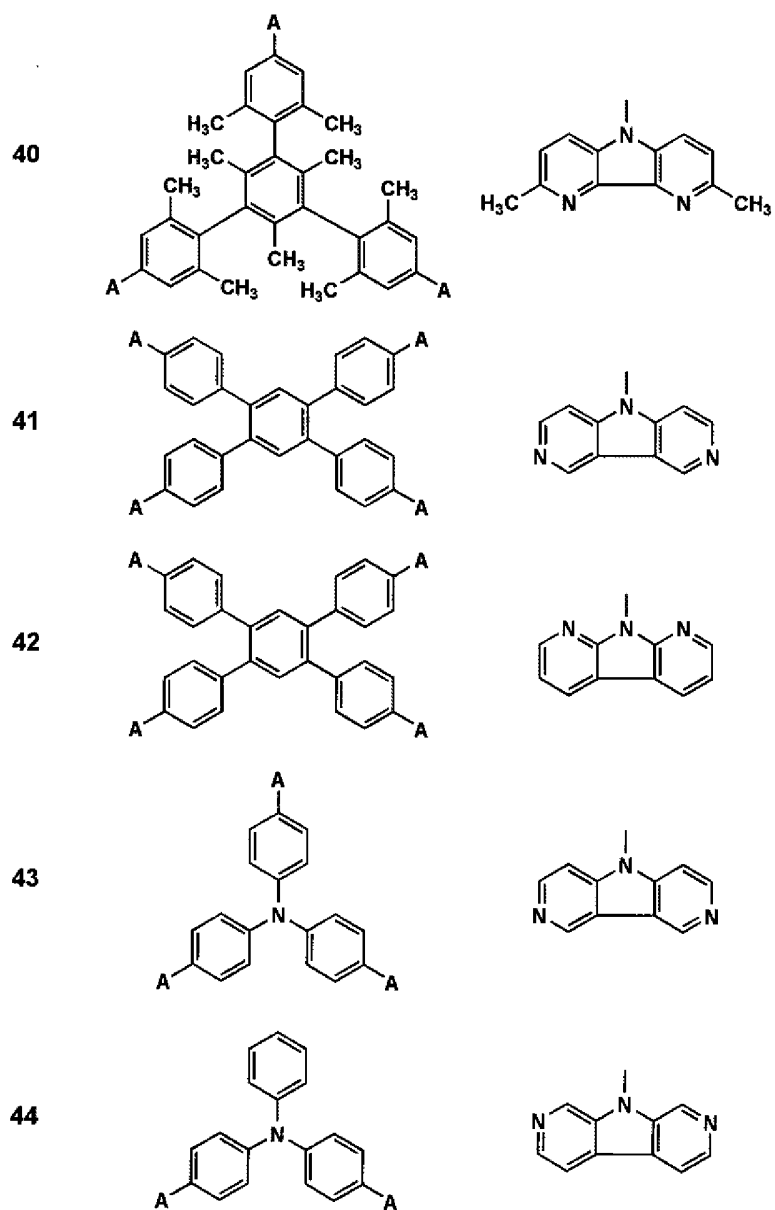


[0103] [化21]

化合物

中心骨格

A

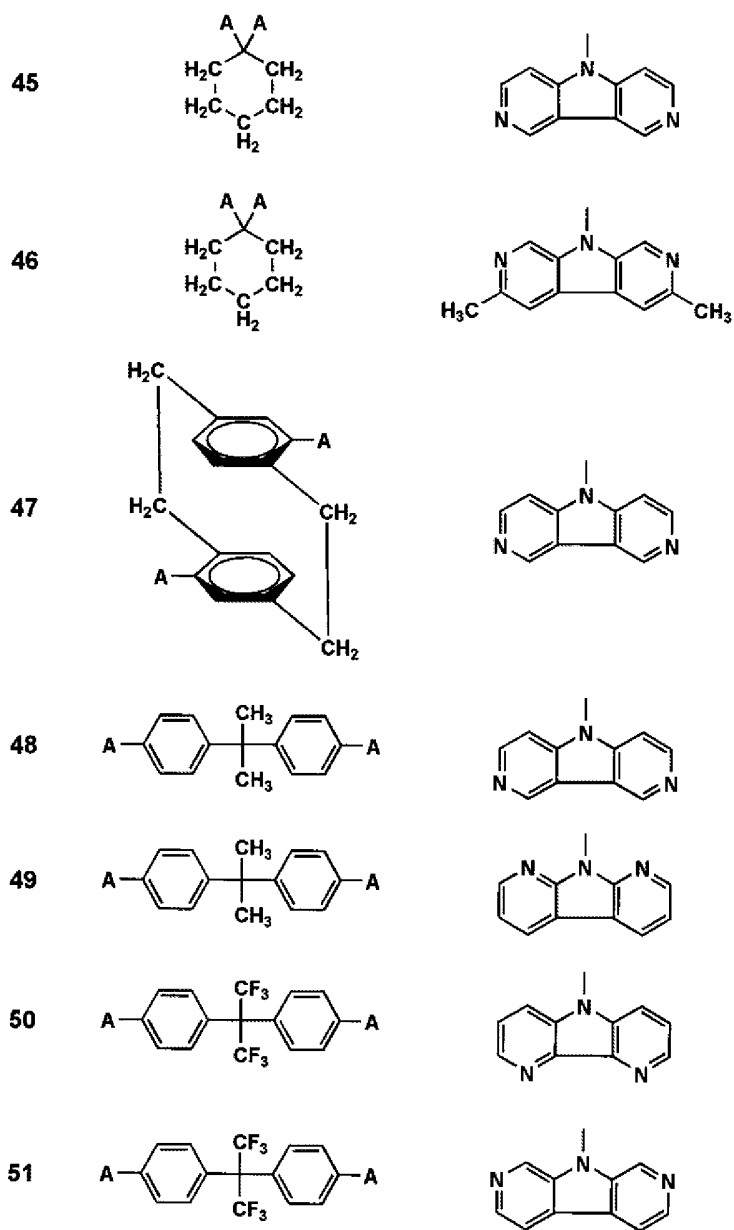


[0104] [化22]

化合物

中心骨格

A

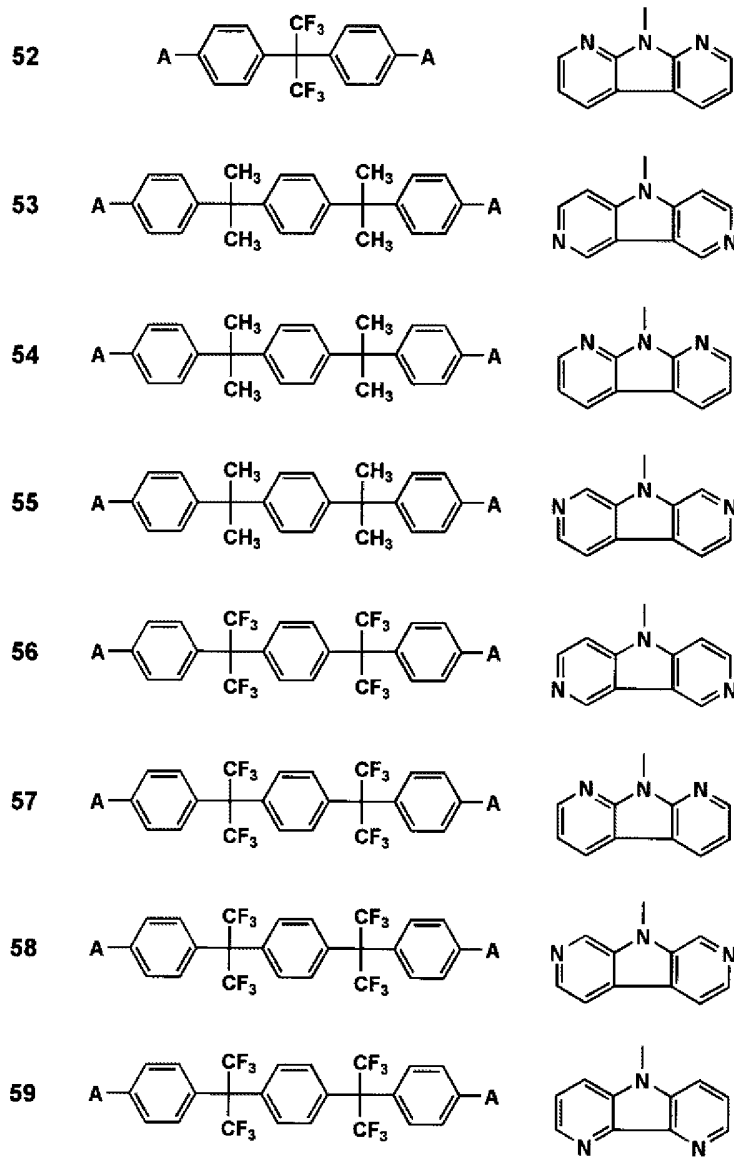


[0105] [化23]

化合物

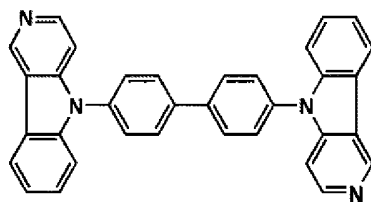
中心骨格

A

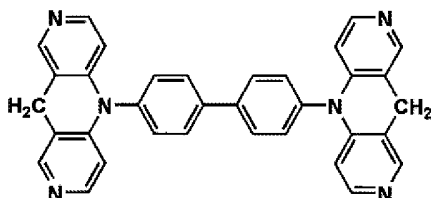


[0106] [化24]

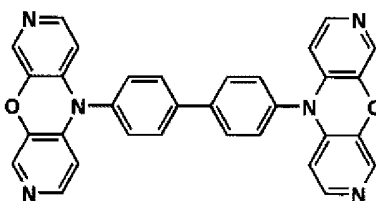
60



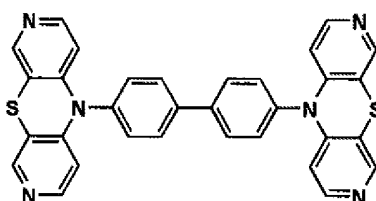
61



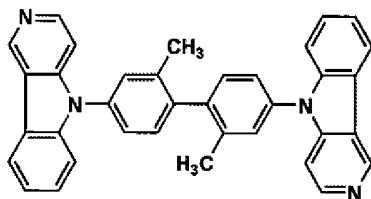
62



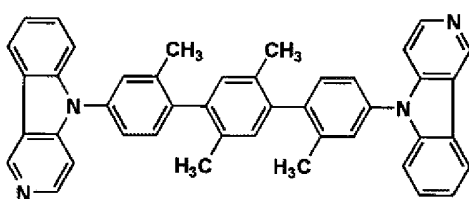
63



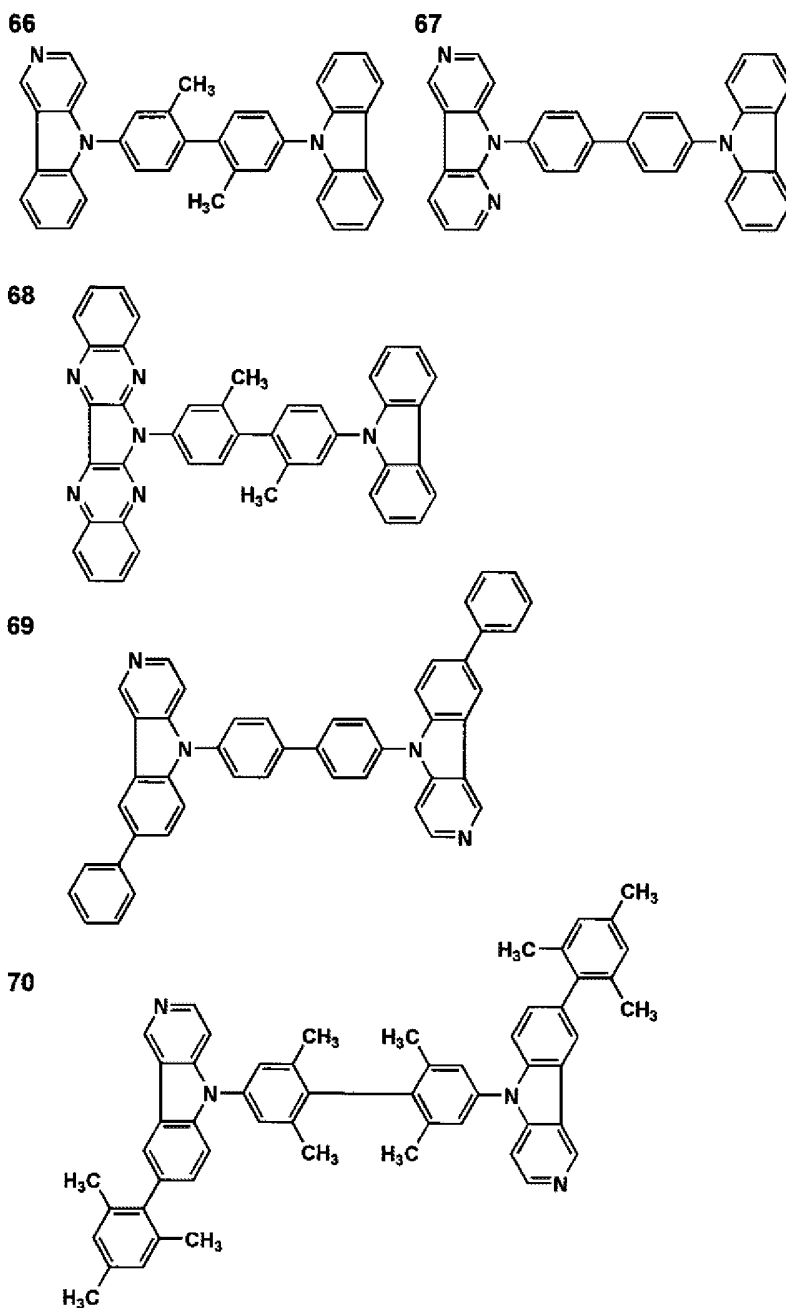
64



65

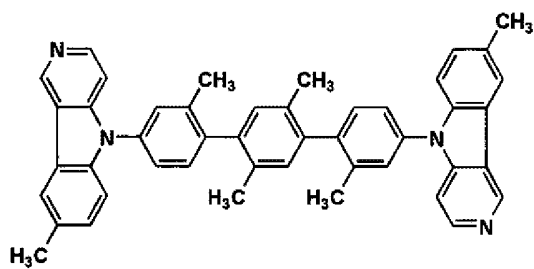


[0107] [化25]

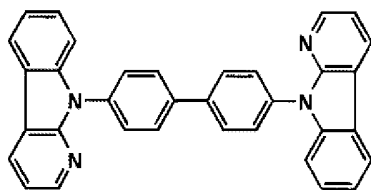


[0108] [化26]

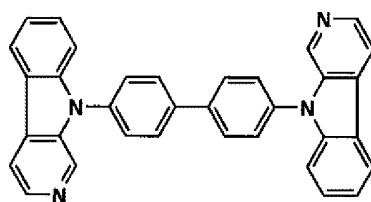
71



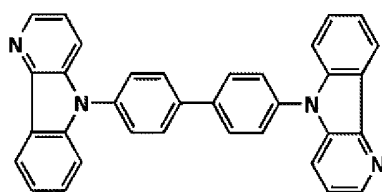
72



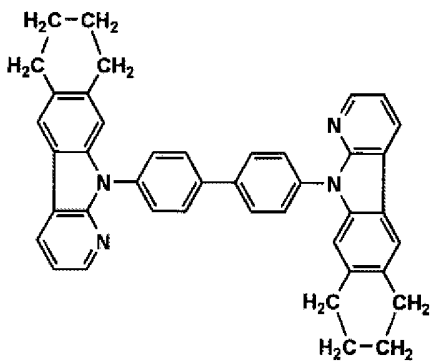
73



74

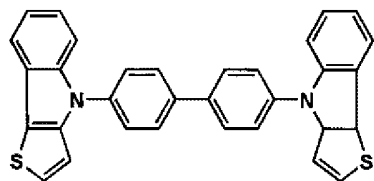


75

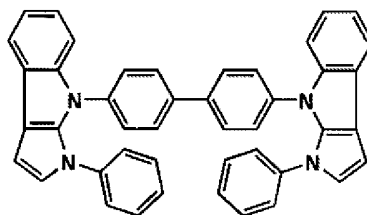


[0109] [化27]

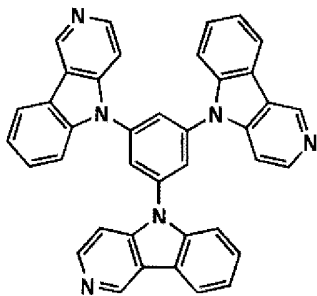
76



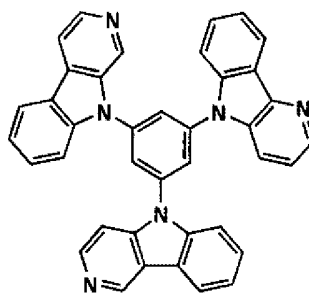
77



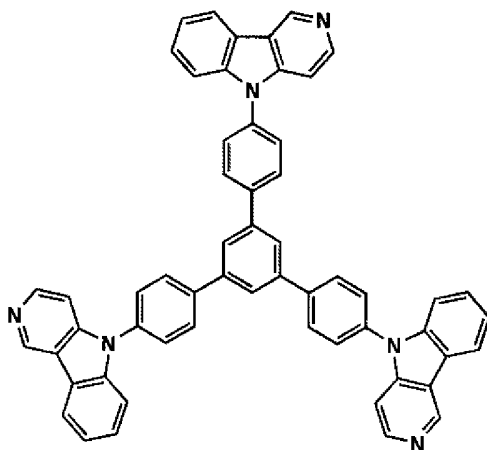
78



79

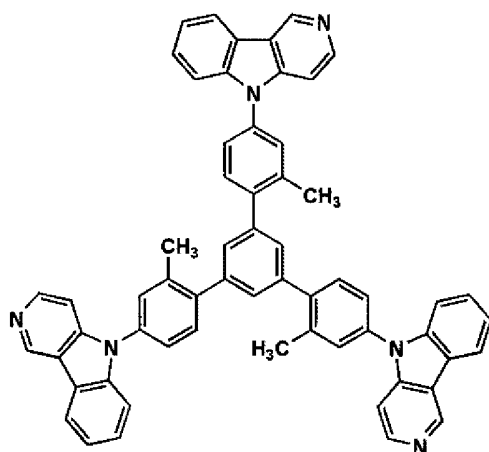


80

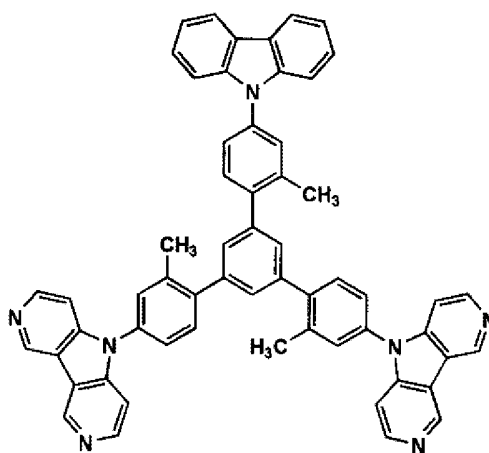


[0110] [化28]

81

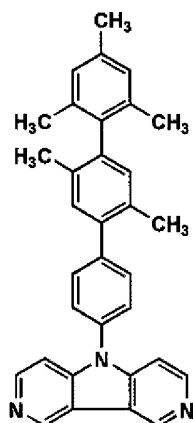


82

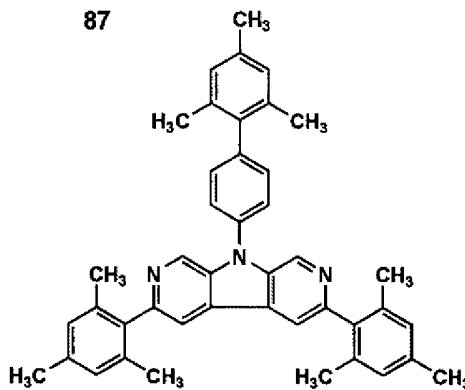


[0111] [化29]

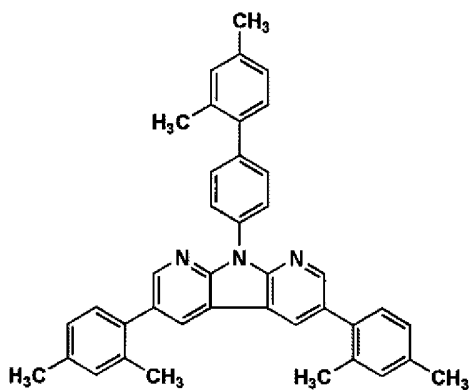
86



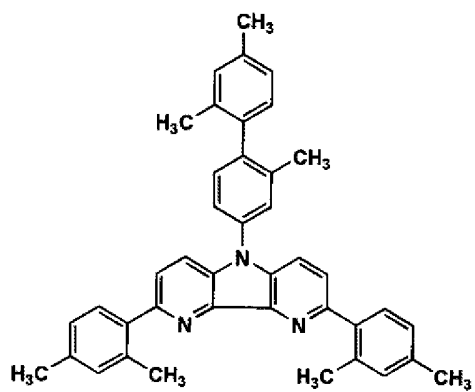
87



88

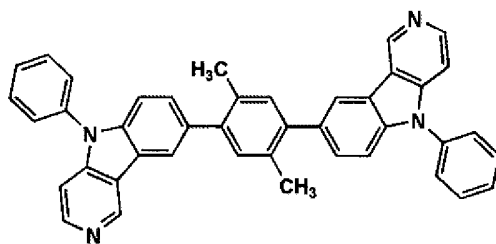


89

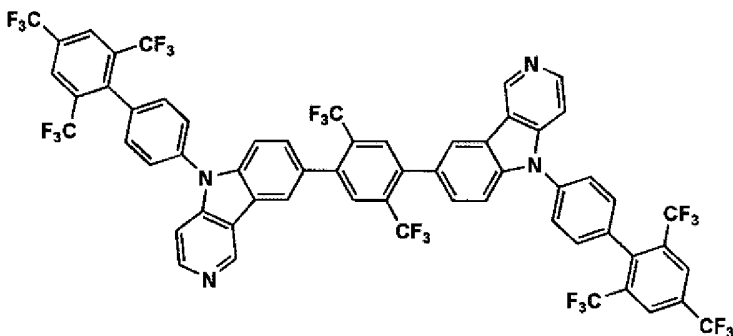


[0113] [化31]

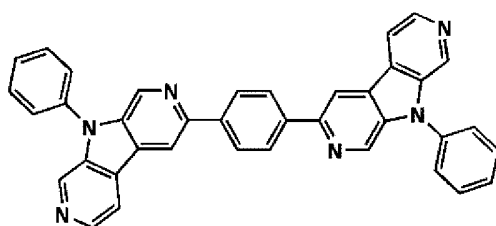
90



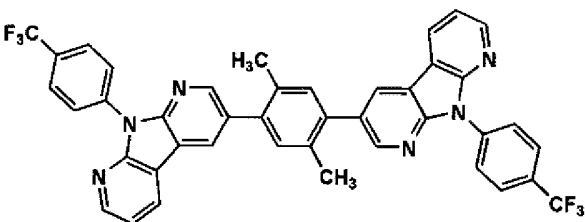
91



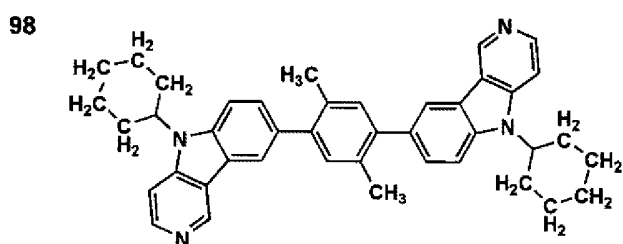
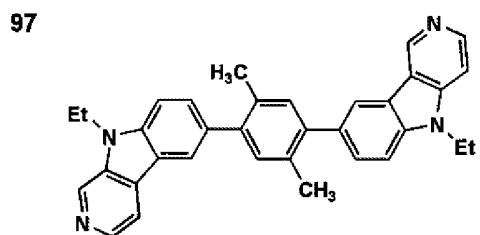
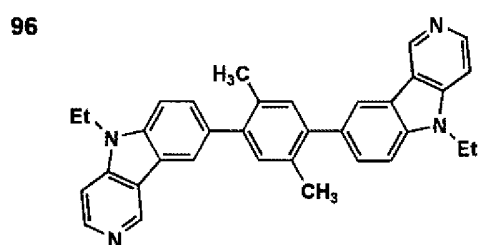
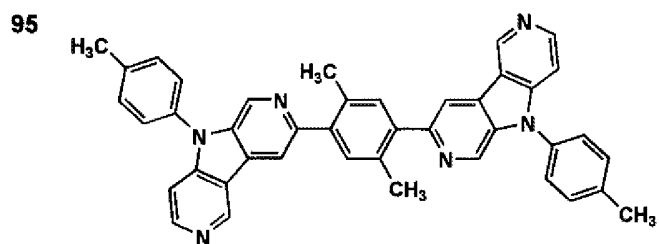
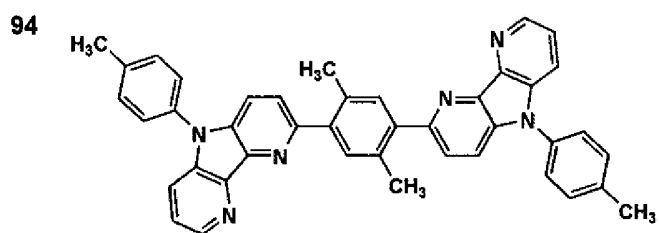
92



93

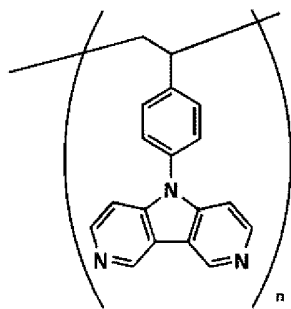


[0114] [化32]

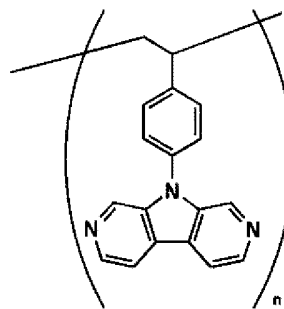


[0115] [化33]

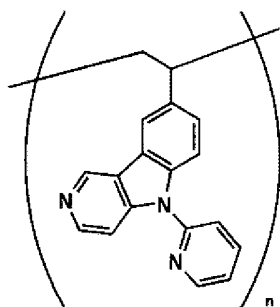
99



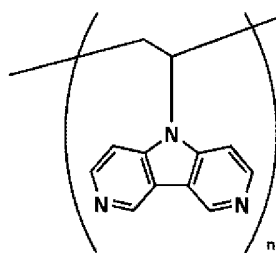
100



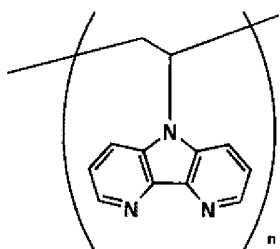
101



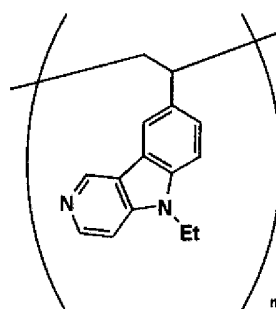
102



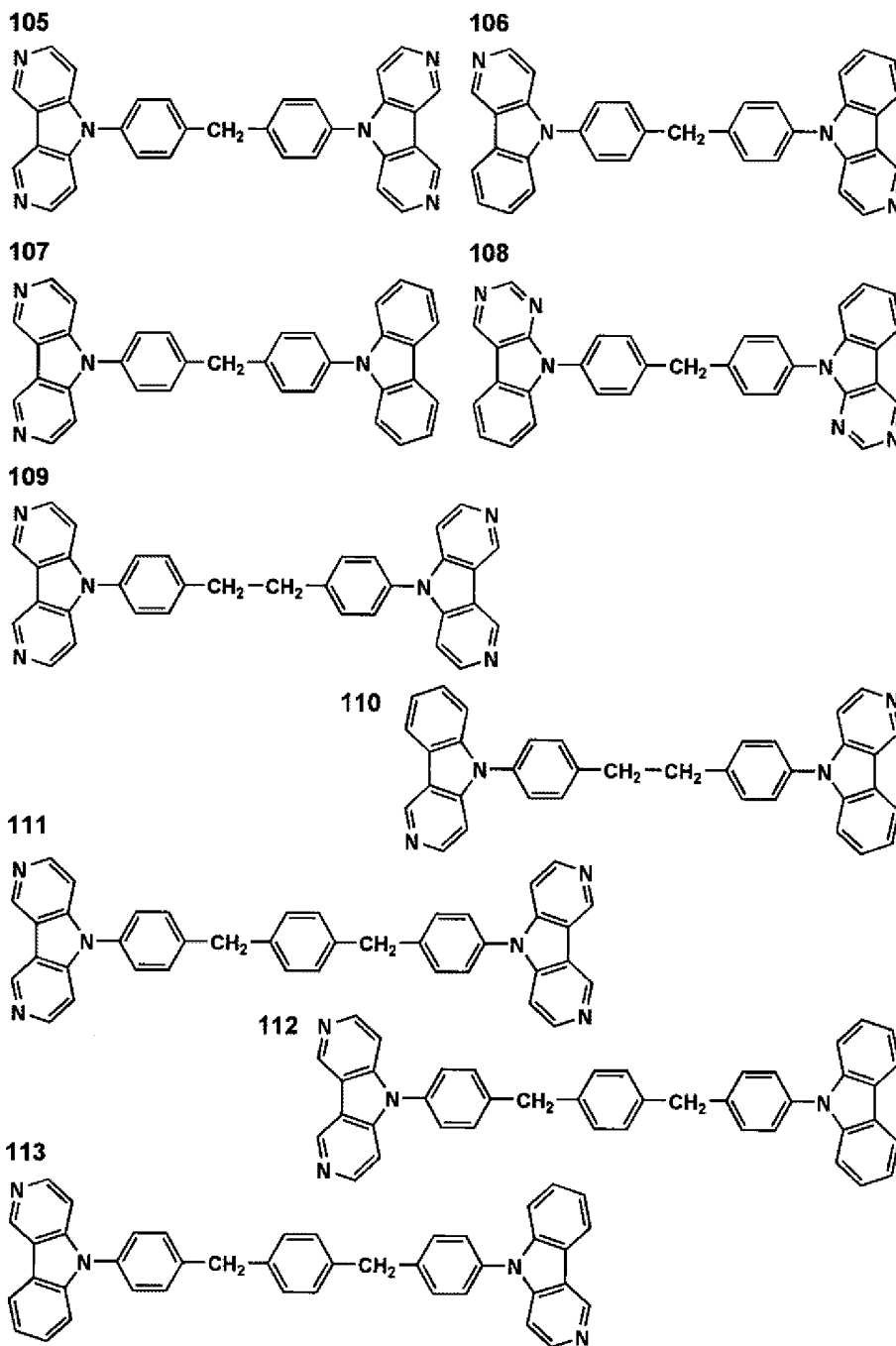
103



104

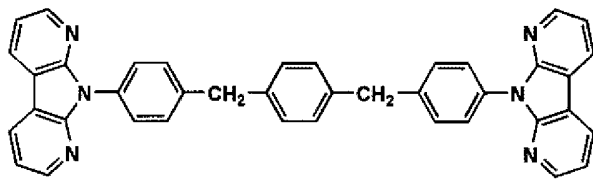


[0116] [化34]

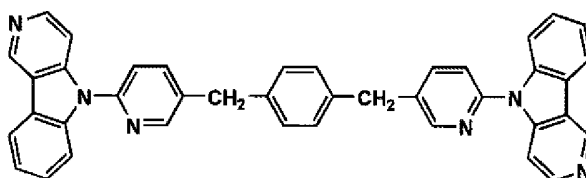


[0117] [化35]

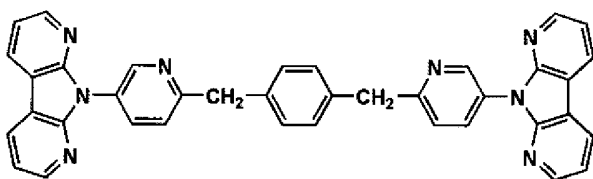
114



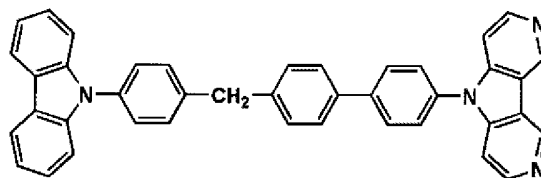
115



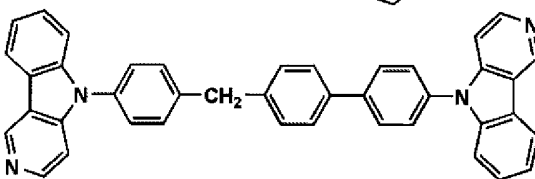
116



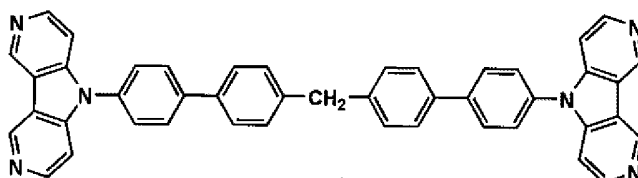
117



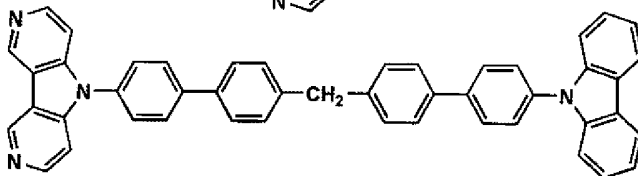
118



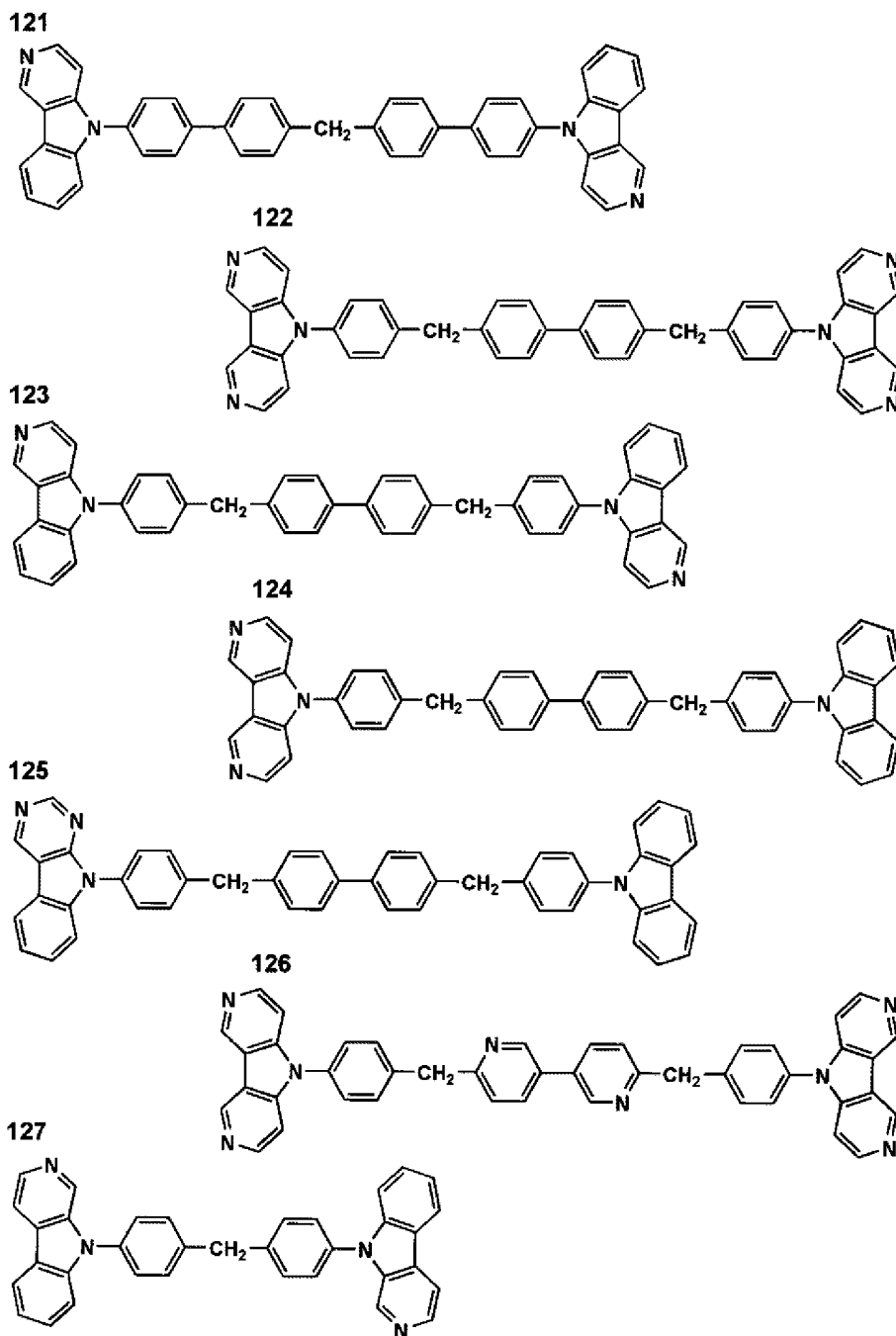
119



120

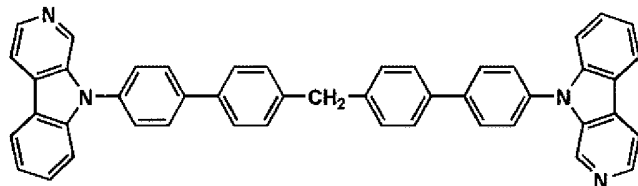


[0118] [化36]

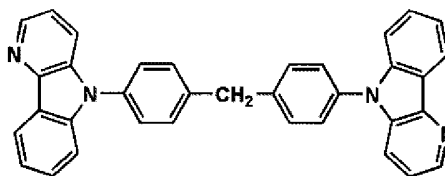


[0119] [化37]

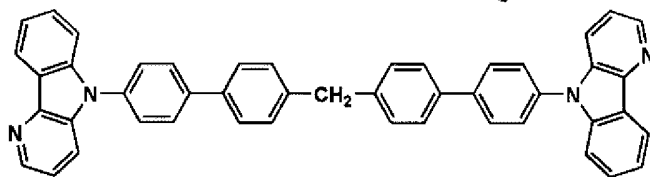
128



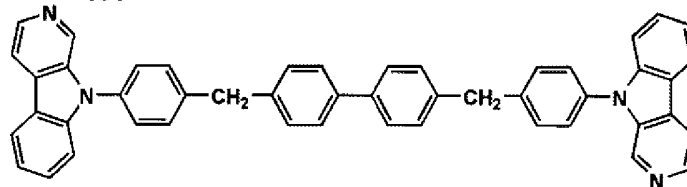
129



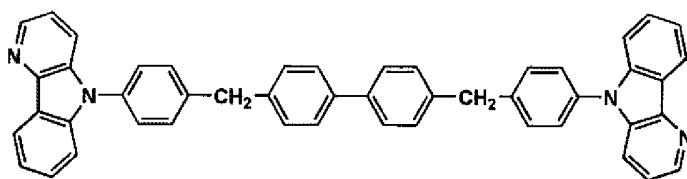
130



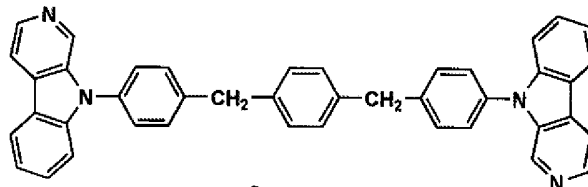
131



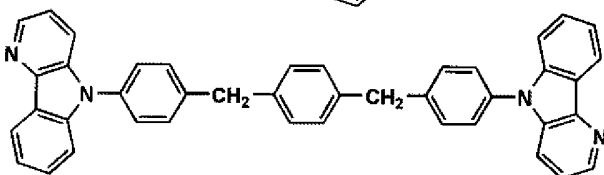
132



133

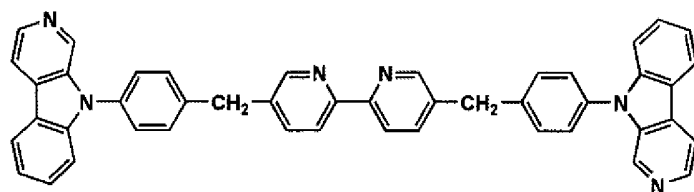


134

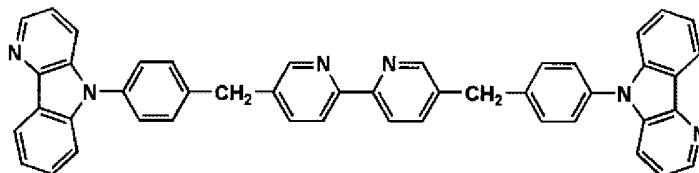


[0120] [化38]

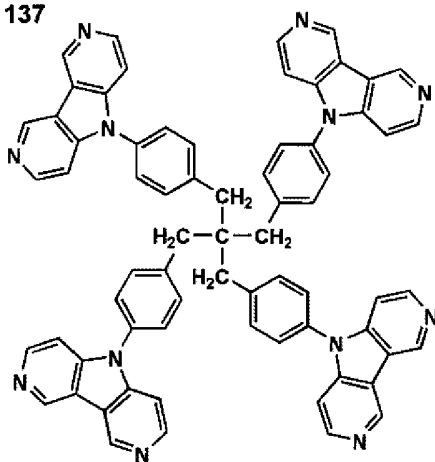
135



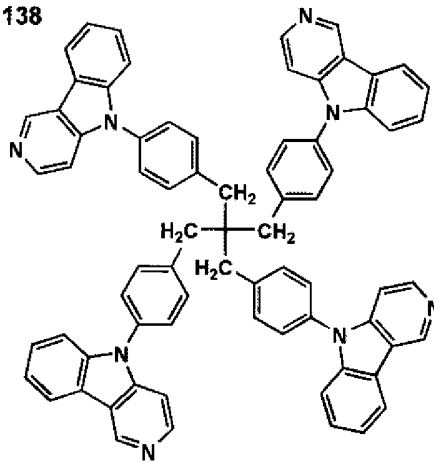
136



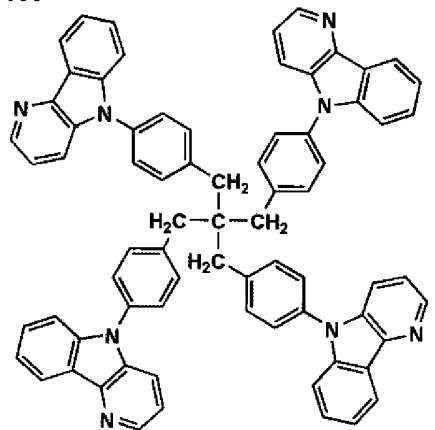
137



138

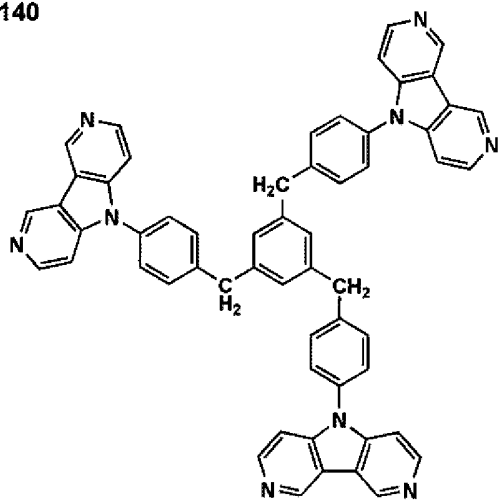


139

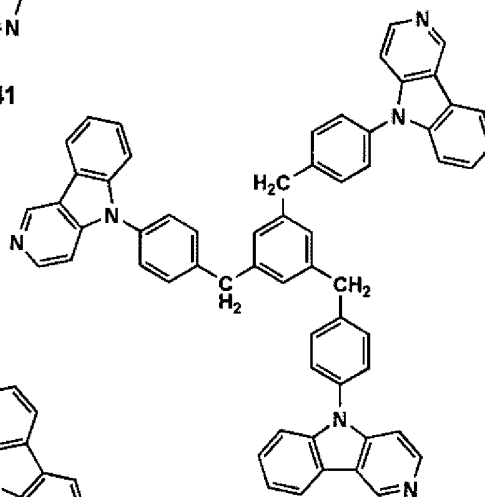


[0121] [化39]

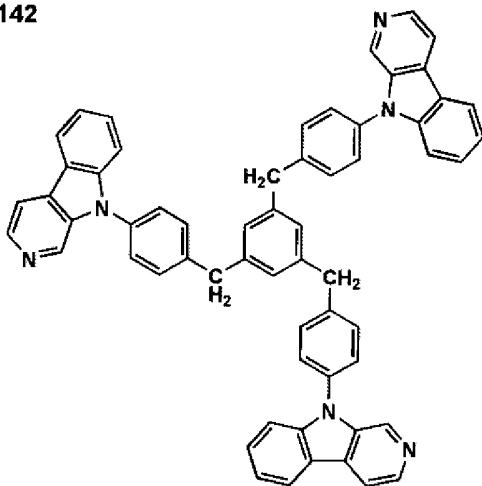
140



141

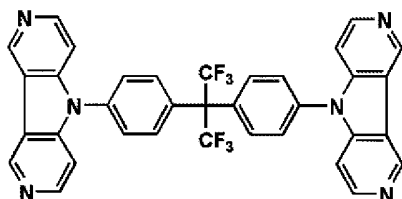


142

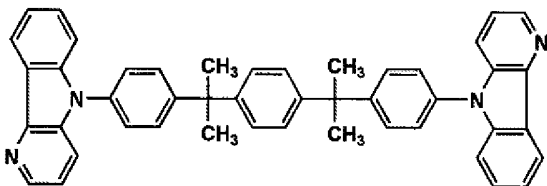


[0122] [化40]

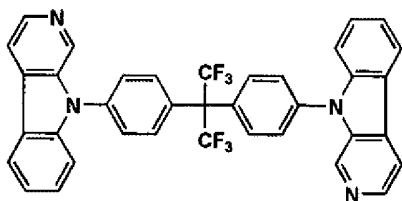
143



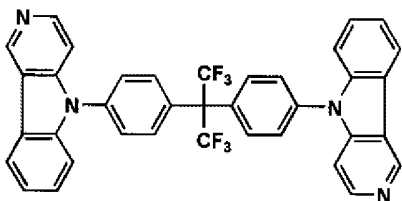
144



145

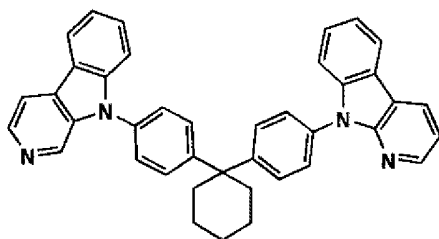


146

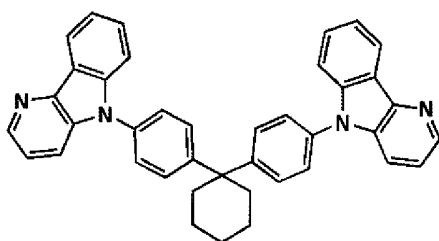


[0123] [化41]

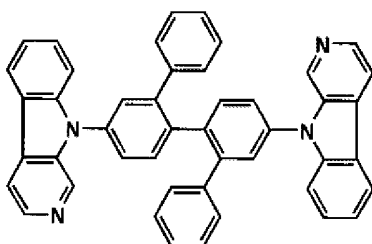
147



148

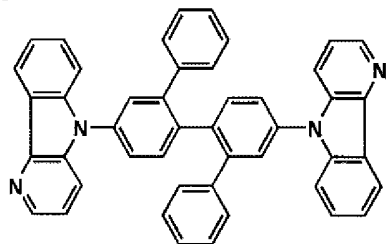


149

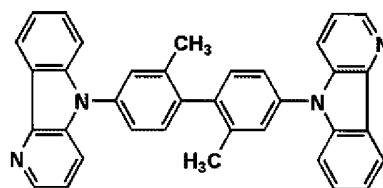


[0124] [化42]

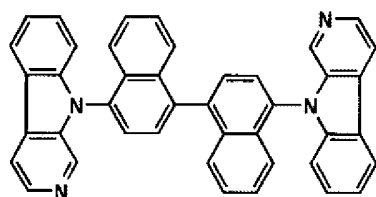
150



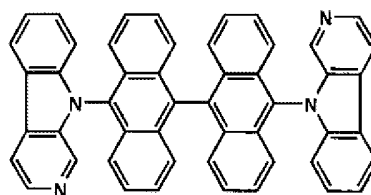
151



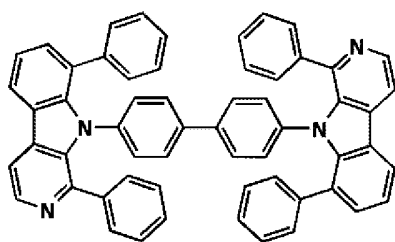
152



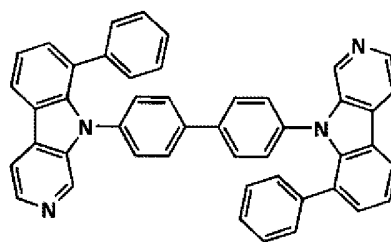
153



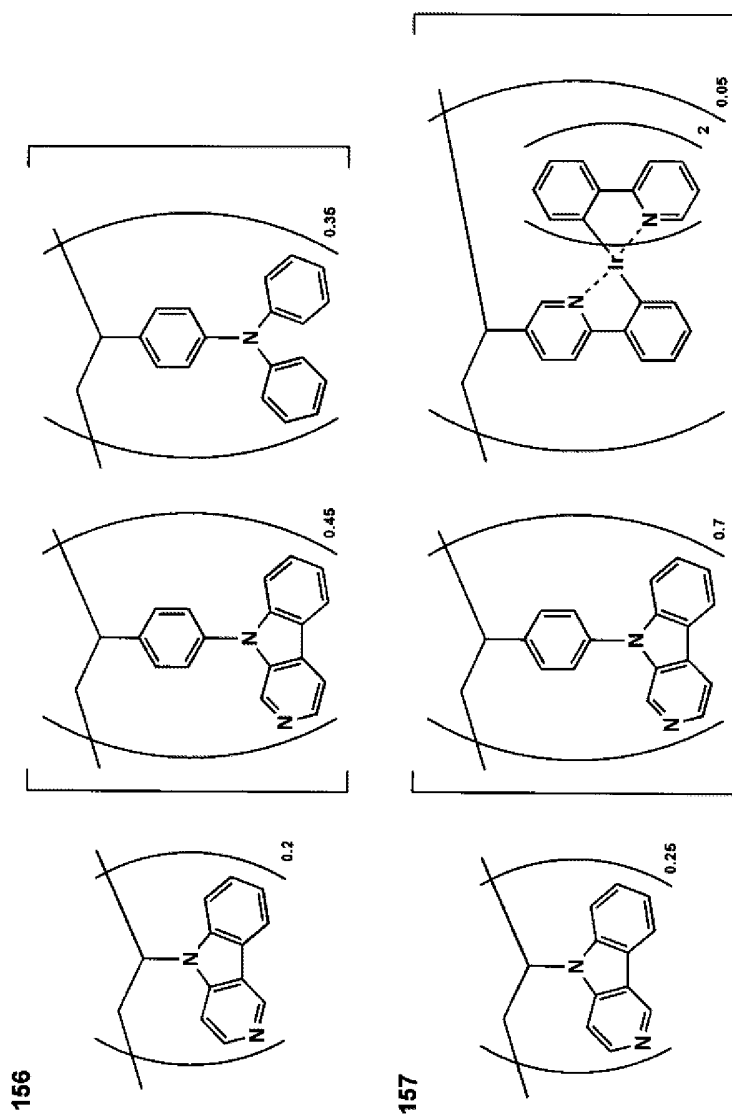
154



155

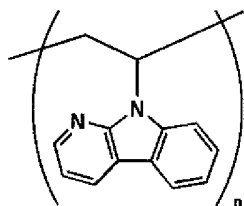


[0125] [化43]

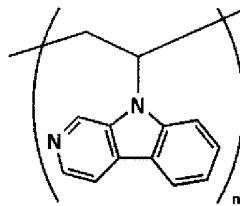


[0126] [化44]

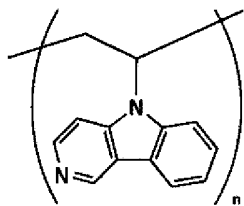
158



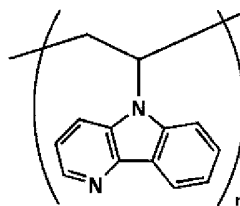
159



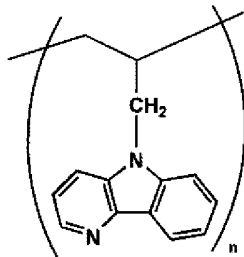
160



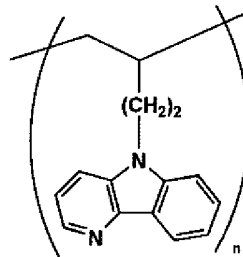
161



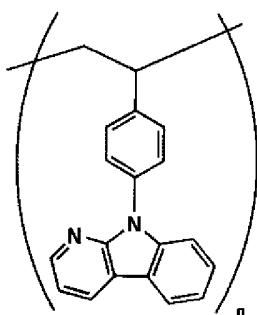
162



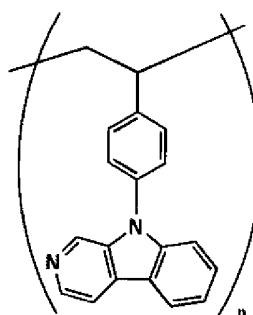
163



164

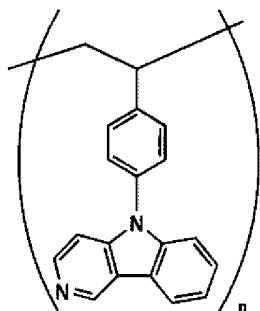


165

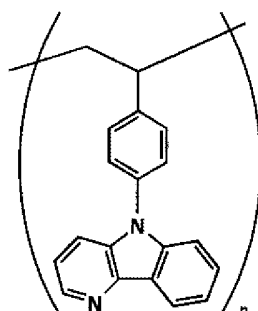


[0127] [化45]

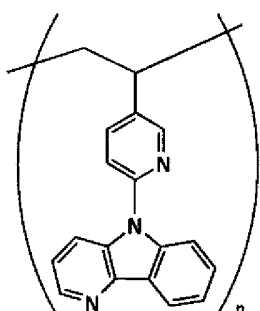
166



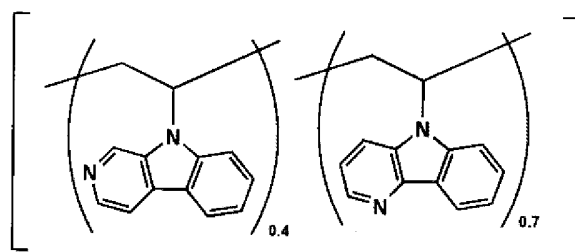
167



168

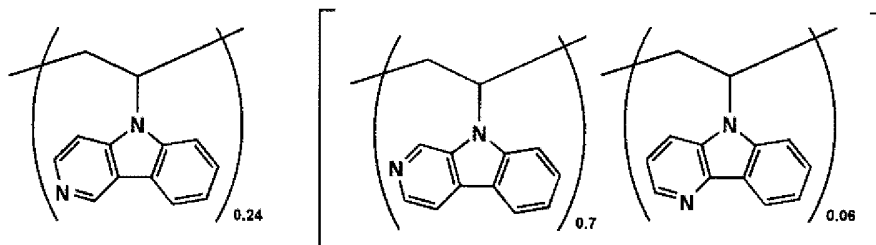


169



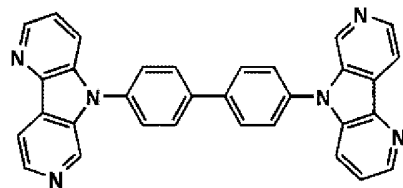
[0128] [化46]

170

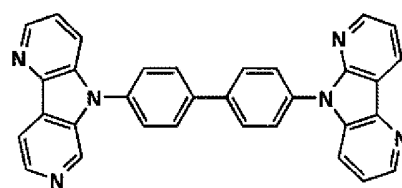


[0129] [化47]

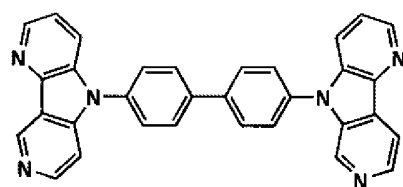
171



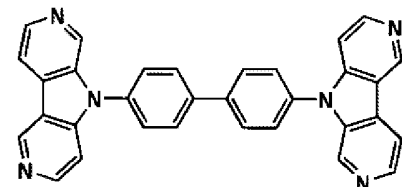
172



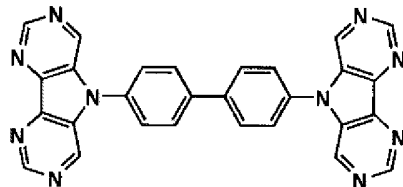
173



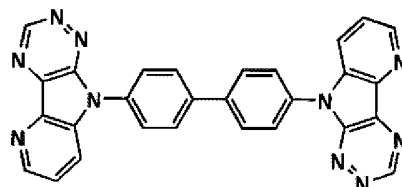
174



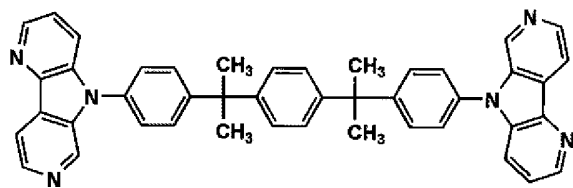
175



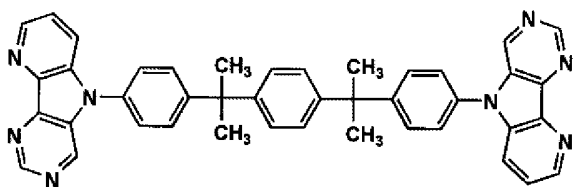
176



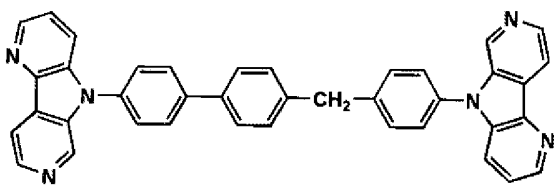
177



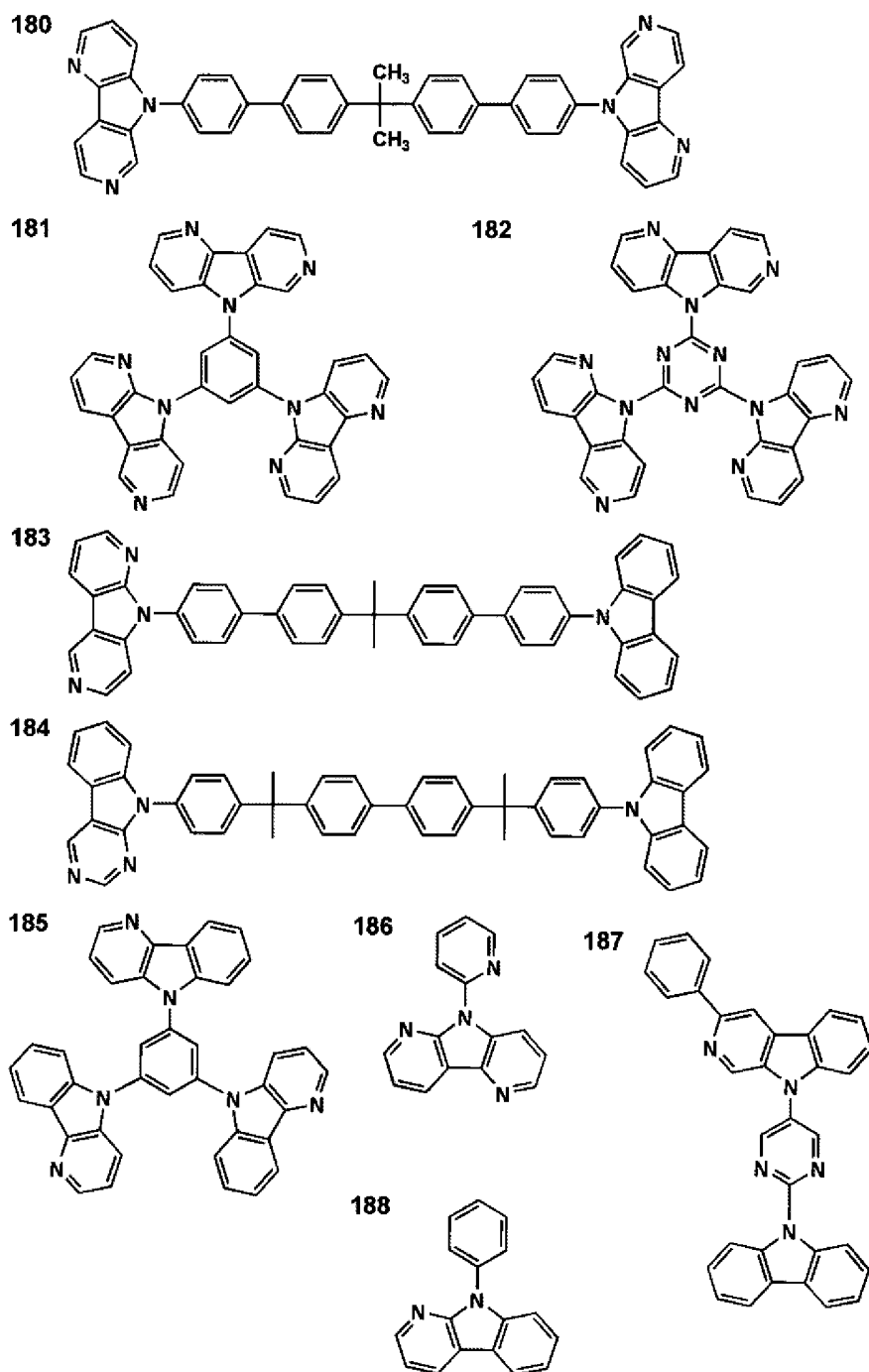
178



179



[0130] [化48]



[0131] 本発明に係る発光層は上記化合物を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。発光層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5nm~5 μ mの範囲で選ばれる。この発光層はこれらの発光材料一種または二種以上からなる一層構造であってもよいし、または同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

[0132] また、この発光層は特開昭57-51781号公報に記載されているように、樹脂等の結着材と共に上記発光材料を溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピコート法等により薄膜化して形成することができる。このようにして形成された発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常は5nm～5 μ mの範囲である。

[0133] [阻止層(正孔阻止層、電子阻止層)]

本発明に係る阻止層(例えば、正孔阻止層、電子阻止層)について説明する。本発明に係る阻止層の膜厚としては好ましくは3nm～100nmであり、さらに好ましくは5nm～30nmである。

[0134] (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し、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、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。

[0135] 本発明においては、発光層に隣接する隣接層、例えば、正孔阻止層、電子阻止層等に、本発明の有機EL素子用材料を正孔阻止層に好ましく用いることができる。

[0136] 正孔阻止層としては、例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日 エヌ・ティー・エス社発行)」の237頁等に記載の正孔阻止(ホールブロック)層等を本発明に係る正孔阻止層として適用可能である。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。

[0137] 本発明に係る正孔阻止層は、前記一般式(2)で表される化合物を含有することが好ましい。また、本発明に係る正孔阻止層には、ボロン誘導体が含まれることが好ましい。

[0138] (電子阻止層)

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層の機能を有し、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、後述する正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。

[0139] また、本発明においては、発光層に隣接する隣接層、即ち正孔阻止層、電子阻止層に、上記の本発明の有機EL素子用材料を用いることが好ましく、特に正孔阻止層に用いることが好ましい。

[0140] [正孔輸送層]

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

[0141] 正孔輸送材料としては特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものやEL素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

[0142] 正孔輸送材料は正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

[0143] 正孔輸送材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

[0144] 芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル; N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1' -ビフェニル]-4, 4' -ジアミン(TPD); 2, 2-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N' -テトラ-p-トリル-4, 4' -ジアミノビフェニル; 1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン; ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N' -ジフェニル-N, N' -ジ(4-

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

[0145] さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、p型−Si、p型−SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。また、本発明においては、正孔輸送層の正孔輸送材料は415nm以下に蛍光極大波長を有することが好ましく、リン光の0−0バンドが450nm以下であることがさらに好ましい。また、正孔輸送材料は高Tgであることが好ましい。

[0146] この正孔輸送層は上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5〜5000nm程度である。この正孔輸送層は上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。

[0147] [電子輸送層]

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

[0148] 従来、単層の電子輸送層、及び複数層とする場合は発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料(正孔阻止材料を兼ねる)としては、下

記の材料が知られている。さらに、電子輸送層は陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

[0149] この電子輸送層に用いられる材料(以下、電子輸送材料という)の例としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノ誘導体、チオピランジオキソド誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。

[0150] さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

[0151] また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(Alq)、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またはPbに置き替わった金属錯体も電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリーまたはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-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。

[0152] この電子輸送層は上記電子輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5000nm程度である。この電子輸送層は上記材料の一種または二種以上からなる一層

構造であってもよい。

[0153] 次に、本発明の有機EL素子の構成層として用いられる、注入層について説明する。

[0154] [注入層(電子注入層、正孔注入層)]

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

[0155] 注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日 エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123～166頁)に詳細に記載されており、正孔注入層(陽極バッファ層)と電子注入層(陰極バッファ層)とがある。

[0156] 陽極バッファ層(正孔注入層)は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン(エメラルディン)やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。

[0157] 陰極バッファ層(電子注入層)は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。

[0158] 上記バッファ層(注入層)はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるがその膜厚は0.1nm～100nmの範囲が好ましい。

[0159] この注入層は上記材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。注入層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm～5000nm程度である。

。この注入層は上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。

[0160] [陽極]

本発明の有機EL素子に係る陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及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(In_2O_3 - 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法で所望の形状のパターンを形成してもよく、また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。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 Ω / \square 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10nm~1000nm、好ましくは10nm~200nmの範囲で選ばれる。

[0161] [陰極]

一方、本発明に係る陰極としては、仕事関数の小さい(4eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及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、電子注入性及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、例えば、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 Ω / \square 以下が好ましく、膜厚は通

常10nm～1000nm、好ましくは50nm～200nmの範囲で選ばれる。なお、発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。

[0162] [基体(基板、基材、支持体等ともいう)]

本発明の有機EL素子に係る基体としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては、例えば、ガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、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。

[0163] 樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレンナフタレート(PEN)、ポリエーテルスルホン(PES)、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート(PC)、セルローストリアセテート(TAC)、セルロースアセテートプロピオネート(CAP)等からなるフィルム等が挙げられる。

[0164] 樹脂フィルムの表面には、無機物または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、水蒸気透過率が $0.01\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{day}\cdot\text{atm}$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

[0165] 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量子効率 η_{ext} は、1%以上であることが好ましく、より好ましくは2%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。

[0166] 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よい。

[0167] 照明用途で用いる場合には、発光ムラを低減させるために粗面加工したフィルム(アンチグレアフィルム等)を併用することもできる。

[0168] 多色表示装置として用いる場合は少なくとも2種類の異なる発光極大波長を有する有機EL素子からなるが、有機EL素子を作製する好適な例を説明する。

[0169] [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／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極からなる有機EL素子の作製法について説明する。

[0170] まず適当な基体上に所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を1 μ m以下、好ましくは10nm～200nm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。次に、この上に素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層等の有機化合物を含有する薄膜を形成させる。

[0171] この有機化合物を含有する薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如くスピコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、印刷法等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法またはスピコート法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。製膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類等により異なるが、一般にボート加熱温度50℃～450℃、真空度 10^{-6} ～ 10^{-2} Pa、蒸着速度0.01nm/秒～50nm/秒、基板温度-50℃～300℃、膜厚0.1nm～5 μ mの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

[0172] これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1 μ m以下好ましくは50nm～200nmの範囲の膜厚になるように、例えば、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。この有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施しても構わない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

[0173] [表示装置]

本発明の表示装置について説明する。

[0174] 本発明の表示装置は単色でも多色でもよいが、ここでは多色表示装置について説明する。多色表示装置の場合は発光層形成時のみシャドーマスクを設け、一面に蒸着法、キャスト法、スピコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。

[0175] 発光層のみパターニングを行う場合その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、インクジェット法、印刷法である。蒸着法を用いる場合においては、シャドーマスクを

用いたパターンニングが好ましい。

- [0176] また作製順序を逆にして、陰極、電子輸送層、正孔阻止層、発光層、正孔輸送層、陽極の順に作製することも可能である。
- [0177] このようにして得られた多色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2V～40V程度を印加すると発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加する場合には、陽極が＋、陰極が－の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。
- [0178] 多色表示装置は表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。表示デバイス、ディスプレイにおいて、青、赤、緑発光の3種の有機EL素子を用いることにより、フルカラーの表示が可能となる。
- [0179] 表示デバイス、ディスプレイとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリックス(パッシブマトリックス)方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。
- [0180] 発光光源としては家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。
- [0181] [照明装置]
本発明の照明装置について説明する。
- [0182] 本発明の有機EL素子に共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよく、このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、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、これらに限定されない。またレーザー発振をさせることにより、上記用途に使用してもよい。
- [0183] また、本発明の有機EL素子は、照明用や露光光源のような一種のランプとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像

を直接視認するタイプの表示装置(ディスプレイ)として使用してもよい。動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリックス(パッシブマトリックス)方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。または異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を2種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。

[0184] 本発明の有機EL素子から構成される表示装置の一例を図面に基づいて説明する。

[0185] 図1は、有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。

[0186] ディスプレイ1は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行う制御部B等からなる。

[0187] 制御部Bは、表示部Aと電氣的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線ごとの画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部Aに表示する。

[0188] 図2は、表示部Aの模式図である。

[0189] 表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。図2においては、画素3の発光した光が、白矢印方向(下方向)へ取り出される場合を示している。

[0190] 配線部の走査線5及び複数のデータ線6は、各々導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している(詳細は図示せず)。

[0191] 画素3は、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を、適宜、同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

[0192] 次に、画素の発光プロセスを説明する。

- [0193] 図3は、画素の模式図である。
- [0194] 画素は、有機EL素子10、スイッチングトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデンサ13等を備えている。複数の画素に有機EL素子10として、赤色、緑色、青色発光の有機EL素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。
- [0195] 図3において、制御部Bからデータ線6を介してスイッチングトランジスタ11のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部Bから走査線5を介してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。
- [0196] 画像データ信号の伝達により、コンデンサ13が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トランジスタ12は、ドレインが電源ライン7に接続され、ソースが有機EL素子10の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン7から有機EL素子10に電流が供給される。
- [0197] 制御部Bの順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフしてもコンデンサ13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機EL素子10の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機EL素子10が発光する。
- [0198] 即ち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子10に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動トランジスタ12を設けて、複数の画素3それぞれの有機EL素子10の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。
- [0199] ここで、有機EL素子10の発光は、複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量の

オン、オフでもよい。

- [0200] また、コンデンサ13の電位の保持は、次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。
- [0201] 本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみデータ信号に応じて有機EL素子を発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。
- [0202] 図4は、パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。図4において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に設けられている。
- [0203] 順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。パッシブマトリクス方式では画素3にアクティブ素子がなく、製造コストの低減が計れる。
- [0204] 本発明に係わる有機EL材料は、また、照明装置として、実質白色の発光を生じる有機EL素子に適用できる。複数の発光材料により複数の発光色を同時に発光させて混色により白色発光を得る。複数の発光色の組み合わせとしては、青色、緑色、青色の3原色の3つの発光極大波長を含有させたものでもよいし、青色と黄色、青緑と橙色等の補色の関係を利用した2つの発光極大波長を含有したものでもよい。
- [0205] また、複数の発光色を得るための発光材料の組み合わせは、複数のリン光または蛍光を発光する材料(発光ドーパント)を、複数組み合わせたもの、蛍光またはリン光を発光する発光材料と、該発光材料からの光を励起光として発光する色素材料とを組み合わせたもののいずれでもよいが、本発明に係わる白色有機EL素子においては、発光ドーパントを複数組み合わせる方式が好ましい。
- [0206] 複数の発光色を得るための有機EL素子の層構成としては、複数の発光ドーパントを、一つの発光層中に複数存在させる方法、複数の発光層を有し、各発光層中に発光波長の異なるドーパントをそれぞれ存在させる方法、異なる波長に発光する微小画素をマトリクス状に形成する方法等が挙げられる。
- [0207] 本発明に係わる白色有機EL素子においては、必要に応じ製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ニングを施してもよい。パターニングする場

合は、電極のみをパターンニングしてもいいし、電極と発光層をパターンニングしてもいいし、素子全層をパターンニングしてもいい。

[0208] 発光層に用いる発光材料としては特に制限はなく、例えば、液晶表示素子におけるバックライトであれば、CF(カラーフィルター)特性に対応した波長範囲に適合するように、本発明に係わる白金錯体、また公知の発光材料の中から任意のものを選択して組み合わせて白色化すればよい。

[0209] このように、白色発光有機EL素子は、前記表示デバイス、ディスプレイに加えて、各種発光光源、照明装置として、家庭用照明、車内照明、また、露光光源のような1種のランプとして、液晶表示装置のバックライト等、表示装置にも有用に用いられる。

[0210] その他、時計等のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体等の光源、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、さらには表示装置を必要とする一般の家庭用電気器具等広い範囲の用途が挙げられる。

実施例

[0211] 以下、実施例により本発明を説明するが、本発明はこれらに限定されない。

[0212] 実施例1

[有機EL素子1の作製]

陽極としてガラス上にITOを150nm成膜した基板(NHテクノグラス社製:NA-45)にパターンニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をiso-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。この透明支持基板を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、5つのタンタル製抵抗加熱ボートに、 α -NPD、CBP、Ir-11、BCP、Alq₃をそれぞれ入れ、真空蒸着装置(第1真空槽)に取付けた。

[0213] さらに、タンタル製抵抗加熱ボートにフッ化リチウムを、タングステン製抵抗加熱ボートにアルミニウムをそれぞれ入れ、真空蒸着装置の第2真空槽に取り付けた。

[0214] まず、第1の真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、 α -NPDの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒~0.2nm/秒で透明支持基板に膜厚25nmの厚さになるように蒸着し、正孔注入/輸送層を設けた。

[0215] さらに、CBPの入った前記加熱ボートとIr-11の入ったボートをそれぞれ独立に通

電して発光ホストであるCBPと発光ドーパントであるIr-11の蒸着速度が100:6になるように調節し膜厚30nmの厚さになるように蒸着し、発光層を設けた。

[0216] ついで、BCPの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒～0.2nm/秒で厚さ10nmの正孔阻止層を設けた。さらに、Alq₃の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒～0.2nm/秒で膜厚40nmの電子輸送層を設けた。

[0217] 次に、前記の如く電子輸送層まで製膜した素子を真空のまま第2真空槽に移した後、電子輸送層の上にステンレス鋼製の長方形穴あきマスクが配置されるように装置外部からリモートコントロールして設置した。

[0218] 第2真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧した後、フッ化リチウム入りのボートに通電して蒸着速度0.01nm/秒～0.02nm/秒で膜厚0.5nmの陰極バッファー層を設け、次いでアルミニウムの入ったボートに通電して蒸着速度1nm/秒～2nm/秒で膜厚150nmの陰極をつけた。さらにこの有機EL素子を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス(純度99.999%以上の高純度窒素ガスで置換したグローブボックス)へ移し、図5、図6に示したような内部を窒素で置換した封止構造にして、照明装置として使用可能な有機EL素子1を作製した。

[0219] 得られた照明装置は発光効率が高く、発光寿命の長い白色光を発する薄型の照明装置として使用することができた。尚、図5は照明装置の概略図で、図6は照明装置の断面図である。有機EL素子101をガラスカバー102で覆った。

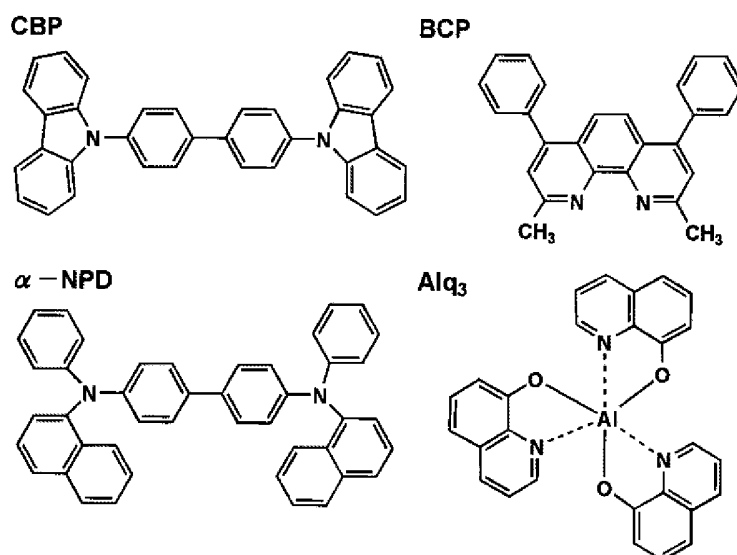
[0220] 図6において、105は陰極で、106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板である。なおガラスカバー102内には窒素ガス108が充填され、捕水剤109が設けられている。

[0221] なお、捕水剤として用いた酸化バリウムは、アルドリッチ社製の高純度酸化バリウム粉末を、粘着剤付きのフッ素樹脂系半透過膜(マイクロテックス S-NTF8031Q 日東電工社製)でガラスカバー102に貼り付けたものを予め準備して使用した。ガラスカバー102と有機EL素子の接着には紫外線硬化型接着剤(図示していない)を用い、紫外線ランプを照射することで両者を接着した。

[0222] [有機EL素子2～16の作製]

有機EL素子1の作製において、表1に記載のように、発光ホスト、発光ドーパント及び正孔阻止層を変更した以外は同様にして、有機EL素子2～16を作製した。

[0223] [化49]



[0224] [有機EL素子の評価]

作製した有機EL素子について下記のような評価を行った。評価の結果を表1に示す。

[0225] (外部取り出し量子効率)

得られた有機EL素子について、23°C、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5mA/cm²の定電流を印加した時の外部取り出し量子効率(%)を測定した。測定には分光放射輝度計CS-1000(コニカミノルタセンシング社製)を用いた。なお、量子効率は有機EL素子1を100とした時の相対値で表した。

[0226] (発光寿命)

有機EL素子を室温下、2.5mA/cm²の定電流条件下による連続点灯を行い、初期輝度の90%の輝度になるのに要する時間($\tau_{1/9}$)を測定した。測定には同様に分光放射輝度計CS-1000(コニカミノルタセンシング社製)を用いた。なお、発光寿命は有機EL素子1を100とした時の相対値で表した。

[0227] [表1]

有機 EL 素子 No.	発光ホスト	発光 ドーパント	正孔阻止層	外部取り出し 量子効率	発光寿命	備考
1	CBP	Ir-11	BCP	100	100	比較例
2	CBP	Pt-2	BCP	90	74	比較例
3	CBP	(1-2)	BCP	116	124	本発明
4	CBP	(1-9)	BCP	121	118	本発明
5	CBP	(2-6)	BCP	119	120	本発明
6	CBP	(2-9)	BCP	124	128	本発明
7	CBP	(3-3)	BCP	117	125	本発明
8	CBP	(3-7)	38	127	131	本発明
9	CBP	(4-3)	BCP	113	121	本発明
10	CBP	(4-4)	74	129	133	本発明
11	CBP	(4-8)	BCP	115	123	本発明
12	74	(1-5)	BCP	130	144	本発明
13	74	(4-10)	74	140	145	本発明
14	74	(3-2)	74	138	135	本発明
15	74	(3-5)	74	134	141	本発明
16	74	(4-1)	38	140	137	本発明

[0228] 表1から、本発明に係る金属錯体を発光層に用いた有機EL素子は、比較の有機EL素子に比べ、発光効率が高く、発光寿命が長いことが明らかである。また、請求の範囲第14項に記載の一般式(2)で表される化合物を発光ホスト及び/または正孔阻止層に用いることで、さらに量子効率が向上することが分かる。

[0229] 実施例2

[塗布による白色有機EL素子の作製]

25mm×25mm×0.5mmのガラス支持基板上に直流電源を用い、スパッタ法にてインジウム錫酸化物(ITO、インジウム/錫=95/5モル比)の陽極を形成した(厚み200nm)。この陽極の表面抵抗は10Ω/□であった。これにポリビニルカルバゾール(正孔輸送性バインダーポリマー)/(4-1)/(3-4)/(3-6)/2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(電子輸送材)=200/3/3/2/50(質量比)を調製、溶解したジクロロエタン溶液をスピンドーターで塗布し、100nmの発光層を得た。この有機化合物層の上にパターンニングしたマスク(発光面積が5mm×5mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内で陰極バッファ層としてフッ化リチウム0.5nm及び陰極としてアルミニウム150nmを蒸着して陰極を設けた。陽極、陰極よりそれぞれアルミニウムのリード線を出して発光素子を作

製した。該発光素子を窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、ガラス製の封止容器で紫外線硬化型接着剤(長瀬チバ製、XNR5493)を用いて封止して有機EL素子を作製した。

[0230] この有機EL素子に通電したところほぼ白色の光が得られ、本発明における有機EL素子用材料は塗布による有機EL素子の作製が可能であることが分かった。

[0231] 実施例3

[フルカラー表示装置の作製]

(青色発光素子の作製)

実施例1の有機EL素子14を青色発光素子として用いた。

[0232] (緑色発光素子の作製)

実施例1の有機EL素子12を緑色発光素子として用いた。

[0233] (赤色発光素子の作製)

実施例1の有機EL素子15を赤色発光素子として用いた。

[0234] 上記で作製した、各々赤色、緑色、青色発光有機EL素子を同一基板上に並置し、図1に記載のような形態を有するアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製し、図2には、作製した前記表示装置の表示部Aの模式図のみを示した。即ち、同一基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、並置した複数の画素3(発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等)とを有し、配線部の走査線5及び複数のデータ線6はそれぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している(詳細は図示せず)。前記複数画素3は、それぞれの発光色に対応した有機EL素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。このように各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示装置を作製した。

[0235] このフルカラー表示装置を駆動することにより、輝度が高く、高耐久性を有し、かつ、鮮明なフルカラー動画表示が得られることが分かった。

[0236] 実施例4

〔白色発光素子及び白色照明装置の作製〕

実施例1の透明支持基板の電極を20mm×20mmにパターンニングし、その上に実施例1と同様に正孔注入／輸送層として α -NPDを25nmの厚さで製膜し、さらに、化合物74の入った前記加熱ボートと、化合物(1-7)の入ったボート及び化合物(2-9)の入ったボートをそれぞれ独立に通電して発光ホストである化合物74と発光ドープメントである化合物(1-7)の入ったボート及び化合物(2-9)の蒸着速度が100:6:1になるように調整し膜厚40nmの厚さになるように蒸着し、発光層を設けた。

[0237] ついで、BCPを10nm製膜して正孔阻止層を設けた。さらに、 Alq_3 を40nmで製膜し電子輸送層を設けた。

[0238] 次に、実施例1と同様に、電子輸送層の上にステンレス鋼製の透明電極とほぼ同じ形状の正方形穴あきマスクを設置し、陰極バッファ層としてフッ化リチウム0.5nm及び陰極としてアルミニウム150nmを蒸着製膜した。

[0239] この素子を実施例1と同様な方法及び同様に、図5、図6に示したような内部を窒素で置換した封止構造にして、平面ランプ型の照明装置として使用可能な有機EL素子1を作製した。

[0240] 得られた照明装置は発光効率が高く、発光寿命の長い白色光を発する薄型の照明装置として使用することができた。尚、図5は照明装置の概略図で、図6は照明装置の断面図である。有機EL素子101をガラスカバー102で覆った。図6において、105は陰極で、106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板である。なおガラスカバー102内には窒素ガス108が充填され、捕水剤109が設けられている。

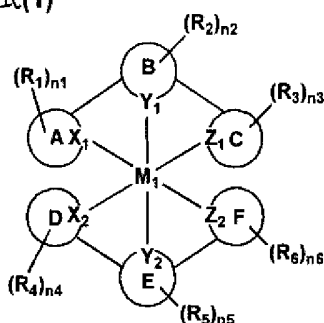
[0241] この平面ランプに通電したところほぼ白色の光が得られ、照明装置として使用できることが分かった。

請求の範囲

- [1] 下記一般式(1)で表される金属錯体であって、配位子部分に二座配位を抑制する置換基を少なくとも一つ有することを特徴とする有機EL素子用材料。

[化1]

一般式(1)



(式中、 M_1 は金属である。 $X_1, Y_1, Z_1, X_2, Y_2, Z_2$ は炭素原子または窒素原子であり、 (X_1, Y_1, Z_1) または (X_2, Y_2, Z_2) の組み合わせのうち少なくとも一つは炭素原子であり、それぞれ環A～環Fの構成要素の一部であるとともに金属 M_1 に結合している。 $R_1 \sim R_6$ は置換基であり、 $n_1 \sim n_6$ は0または1以上の整数である。)

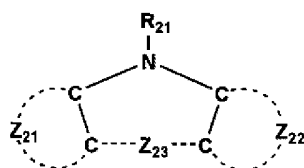
- [2] 前記一般式(1)において、(環A、環B、環C)または(環D、環E、環F)の組み合わせのうち、それぞれ少なくとも一つの環に炭素原子で結合した置換基を有することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機EL素子用材料。
- [3] 前記一般式(1)において、環B及び環Eがファンデルワールス体積(VDW)が 30 \AA^3 以上の置換基を少なくとも一つ有することを特徴とする請求の範囲第1項または第2項に記載の有機EL素子用材料。
- [4] 前記一般式(1)において、環Bの置換基 R_2 の少なくとも一つがファンデルワールス体積(VDW)が 55 \AA^3 以上であることを特徴とする請求の範囲第1項～第3項のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料。
- [5] 前記一般式(1)において、環A～環Fのうち少なくとも一つは5員環構造を有することを特徴とする請求の範囲第1項～第4項のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料。
- [6] 前記金属 M_1 はIr、RhまたはOsであることを特徴とする請求の範囲第1項～第5項の

いずれか1項に記載の有機EL素子用材料。

- [7] 前記一般式(1)で表される金属錯体が高分子の主鎖または側鎖の一部であることを特徴とする請求の範囲第1項～第6項のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料。
- [8] 請求の範囲第1項～第7項のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料を有機EL素子を形成する構成層の一つに含有することを特徴とする有機EL素子。
- [9] 前記構成層の一つが発光層であり、該発光層に請求の範囲第1項～第7項のいずれか1項に記載の有機EL素子用材料を含有することを特徴とする請求の範囲第8項に記載の有機EL素子。
- [10] 前記構成層の少なくとも一層が、下記一般式(2)で表される化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第8項または第9項に記載の有機EL素子。

[化2]

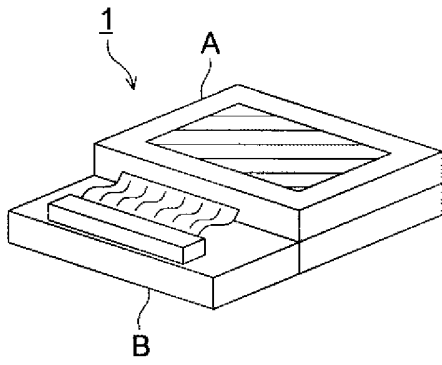
一般式(2)



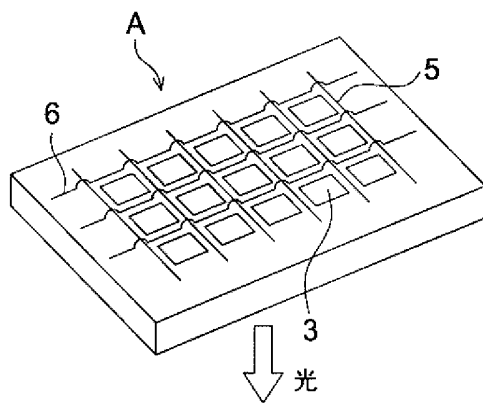
(式中、Z₂₁ は芳香族複素環を形成する原子群を表し、Z₂₂ は芳香族複素環または芳香族炭化水素環を形成する原子群を表し、Z₂₃ は2価の連結基または単なる結合手を表す。R₂₁ は水素原子または置換基を表す。)

- [11] 請求の範囲第8項～第10項のいずれか1項に記載の有機EL素子を有することを特徴とする表示装置。
- [12] 請求の範囲第8項～第10項のいずれか1項に記載の有機EL素子を有することを特徴とする照明装置。

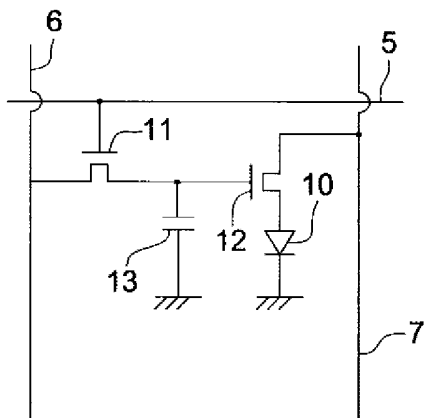
[図1]



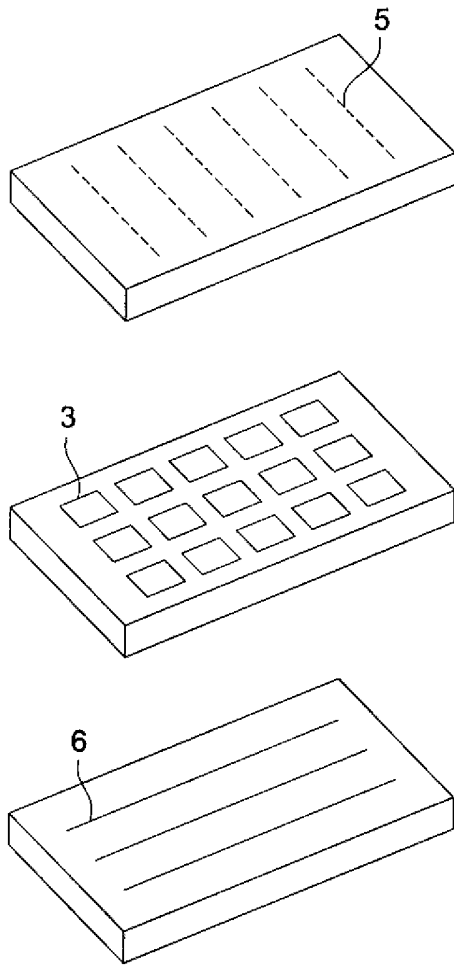
[図2]



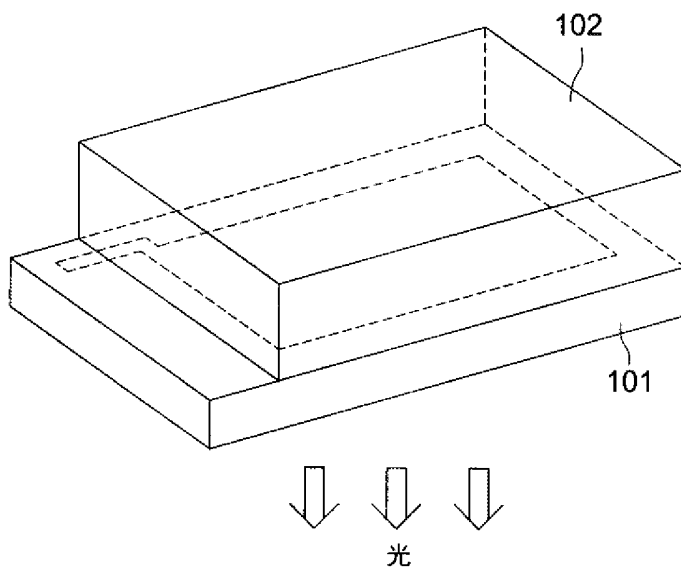
[図3]



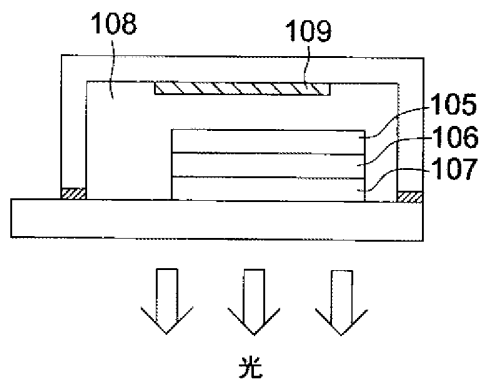
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/304553

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C09K11/06(2006.01), H01L51/50(2006.01)		
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) C09K11/06, H01L51/50		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2006 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2006 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2006		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus (STN), REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, X	JP 2006-86482 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 30 March, 2006 (30.03.06), Claims; Par. Nos. [0060] to [0075], [0107] (Family: none)	1-12
A	WO 2004/041913 A1 (The University of Hong Kong), 31 May, 2004 (31.05.04), Full text & US 2004/0086744 A1 & EP 1558669 A1	1-12
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> 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 16 June, 2006 (16.06.06)		Date of mailing of the international search report 27 June, 2006 (27.06.06)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C09K11/06(2006.01), H01L51/50(2006.01)

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C09K11/06, H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの
 日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2006年
 日本国実用新案登録公報 1996-2006年
 日本国登録実用新案公報 1994-2006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(STN), 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 請求の範囲の番号
E, X	JP 2006-86482 A (富士写真フイルム株式会社) 2006.03.30 特許請求の範囲、段落【0060】～【0075】、【0107】(ファミリーなし)	1-12
A	WO 2004/041913 A1 (ザ・ユニバーシティ・オブ・ホンコン) 2004.05.31, 全文 & US 2004/0086744 A1 & EP 1558669 A1	1-12

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献
「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	「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
「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	「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
「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)	「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
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 16.06.2006	国際調査報告の発送日 27.06.2006
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 滝口 尚良 電話番号 03-3581-1101 内線 3483	4 V	8 9 2 7
---	--	-----	---------