

(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
2010年7月15日(15.07.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/079678 A1

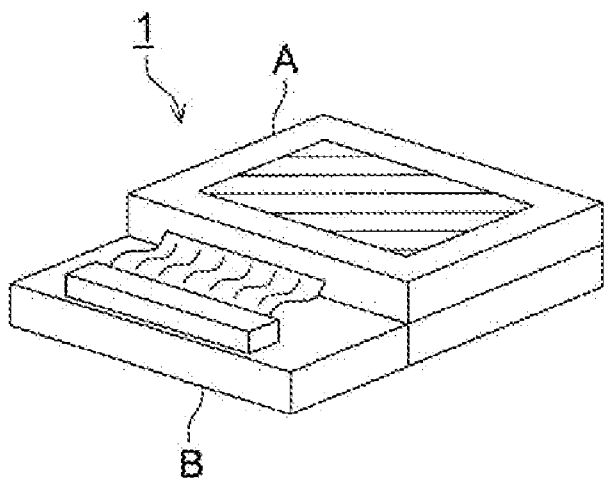
- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/071120
- (22) 国際出願日: 2009年12月18日(18.12.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2009-003341 2009年1月9日(09.01.2009) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタホールディングス株式会社(Konica Minolta Holdings, Inc.) [JP/JP]; 〒1000005 東京都千代田区丸の内一丁目6番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 尾関 秀謙 (OZEKI Hidekane) [JP/JP]; 〒1918511 東京都日野市さくら町1番地コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). ▲高▼ 秀雄 (TAKA Hideo) [JP/JP]; 〒1918511 東京都日野市さくら町1番地コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 片倉 利恵 (KATAKURA Rie) [JP/JP]; 〒1918511 東京都日野市さくら町1番地コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 加藤 栄

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

[続葉有]

- (54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, DISPLAY DEVICE, AND LIGHTING DEVICE
- (54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置及び照明装置

[図1]



(57) Abstract: Disclosed is an organic electroluminescent element having high light-emission luminance and a low driving voltage. The organic electroluminescent element comprises a supporting substrate and at least an anode and a cathode both arranged on the supporting substrate, and additionally comprises a light-emitting layer comprising at least an organic substance and arranged between the anode and the cathode. The light-emitting layer comprises at least a light-emitting dopant and a host compound, wherein the absolute value of the difference between the bipolar moment of the light-emitting dopant and the bipolar moment of the host compound is 2 debyes or less, and the light-emitting layer is formed by coating.

(57) 要約: 高い発光輝度を示し、且つ低駆動電圧の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、支持基板上に少なくとも陽極、陰極を有し、該陽極と該陰極間に少なくとも有機物からなる発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層は少な

くとも発光ドーパントとホスト化合物とを含有し、該発光ドーパントと該ホスト化合物の双極子モーメントの差の絶対値が2デバイ以下であり、該発光層は塗布により形成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。



WO 2010/079678 A1

NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, 添付公開書類:
CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, — 國際調查報告 (條約第 21 條(3))
TD, TG).

明 細 書

発明の名称：

有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置及び照明装置

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、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、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（以下、ELDと言う）がある。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や有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子とも言う）が挙げられる。

[0003] 無機エレクトロルミネッセンス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を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・リン光）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、更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。

[0004] 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、更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。

[0005] 特許第3093796号公報では、スチルベン誘導体、ジスチリルアアリーレン誘導体またはトリススチリルアアリーレン誘導体に微量の蛍光体をドーピングし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成している。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ピングした有機発光層を有する素子（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素子（例えば、特開平3-255190号公報）等が知られている。

- [0006] 上記文献に開示されている技術では、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%であることと、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リン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、室温でリン光を示す材料の研究が活発になってきている。
- [0008] 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。
- [0009] 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。
- [0010] 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。
- [0011] 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。
- [0012] また、有機EL素子は電極と電極の間を厚さわずか0.1 μm 程度の有機材料の膜で構成するオールソリッド素子であり、なお且つその発光が2~20V程度の比較的低い電圧で達成できることから、次世代の平面ディスプレイや照明として期待されている技術である。
- [0013] しかしながら、有機EL素子の構成は透明電極と対抗電極に有機層が挟ま

れただけの単純なものであり、平面ディスプレイの代表である液晶ディスプレイに比べ、部品点数が圧倒的に少ないため製造コストも低く抑えられるはずであるが、現状では必ずしもそうではなく、性能的にもコスト的にも液晶ディスプレイに大きく水をあけられている。

- [0014] 特にコストに対しては、生産性の悪さがその要因と考えられる。現在商品化されている有機ELの殆どが低分子材料を蒸着して成膜する、所謂蒸着法で製造されている。この蒸着法は精製が容易な低分子化合物を有機EL材料として用いることができる（高純度材料が得やすい）こと、更に積層構造を作るのが容易なことから、効率、寿命という面で非常に優れているが、反面 10^{-4} Pa以下という高真空条件下で蒸着を行うため、成膜する装置に制約が加わり、実際には小さい面積の基板にしか適用できず、更に複数層積層するとなると成膜に時間がかかり、スループットが低いことが欠点である。特に照明用途や大面積の電子ディスプレイに適用する場合は問題となり、有機ELがそのようなアプリケーションに実用されていない一つの原因となっている。
- [0015] 一方、有機層をスピコート、インクジェット、印刷、スプレーといったプロセスで製造する塗布法は常圧で薄膜を作製することでき、更に大面積に均一な膜を作製するのに適している。
- [0016] しかしながら、例えば、発光層を塗布で作製する場合、発光ドーパントと発光ホストを同じ溶液中に溶解し塗布するため、発光ドーパントと発光ホストの溶解性の差、あるいは溶媒との相互作用の差などにより、蒸着膜では観測されなかった相分離や不均一分布が起こり、これが性能低下の大きな要因となっている。
- [0017] また、より長寿命化を達成するために、発光層と隣接層の界面のコントロールすべく用いる材料の双極子モーメントに着目した技術（例えば、特許文献1、2参照）、塗布法での素子作製で溶液の増粘等を抑制するために、溶媒の双極子モーメントを規定した技術（例えば、特許文献3参照）、有機発光層と電子注入層との間に、孤立した島状である双極子モーメントが3デバ

イ以上の分子からなる制御層を設けたときに長時間安定な素子を実現できる
とした技術（例えば、特許文献4参照）、有機発光層に双極子モーメントが
大きな宿主材料と電子吸引性基を有するドーパントを含む場合に駆動電圧
が低減できるとした技術（例えば、特許文献5参照）が知られているが、い
ずれも双極子モーメントには着目しているが、発光層内での発光ドーパント
と宿主化合物の双極子モーメントの差に注目した本発明とは異なる。

先行技術文献

特許文献

- [0018] 特許文献1：特開2003-288988号公報
特許文献2：特開2008-53557号公報
特許文献3：特開2006-244806号公報
特許文献4：特開2004-111173号公報
特許文献5：特開2005-158715号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0019] 本発明の目的は、高い発光輝度を示し、且つ低駆動電圧の有機エレクトロ
ルミネッセンス素子、及び該素子を用いた照明装置、表示装置を提供するこ
とである。

課題を解決するための手段

- [0020] 本発明の上記課題は、下記構成により達成される。
- [0021] 1. 支持基板上に少なくとも陽極、陰極を有し、該陽極と該陰極間に少な
くとも有機物からなる発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子に
おいて、該発光層は少なくとも発光ドーパントと宿主化合物とを含有し、
該発光ドーパントと該宿主化合物の双極子モーメントの差の絶対値が2デ
バイ以下であり、該発光層は塗布により形成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。
- [0022] 2. 前記宿主化合物の双極子モーメントが4デバイ以上であることを特

徴とする前記 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0023] 3. 前記宿主化合物がカルバゾール誘導体あるいはアザカルバゾール誘導体であることを特徴とする前記 1 または 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0024] 4. 前記カルバゾール誘導体あるいはアザカルバゾール誘導体が窒素原子を有する 5 員あるいは 6 員の芳香族複素環基を有することを特徴とする前記 3 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0025] 5. 前記窒素原子を有する 5 員あるいは 6 員の芳香族複素環基における芳香族複素環がピリジン、イミダゾール、ピラジン、トリアジン、インドールまたはインダゾールであることを特徴とする前記 4 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0026] 6. 前記発光ドーパントの双極子モーメントが 4 デバイ以下であることを特徴とする前記 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

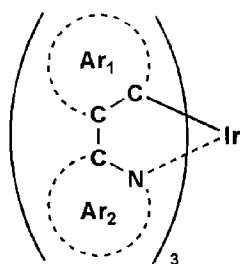
[0027] 7. 前記発光ドーパントがリン光ドーパントであることを特徴とする前記 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0028] 8. 前記リン光ドーパントがイリジウム錯体であることを特徴とする前記 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0029] 9. 前記イリジウム錯体が、下記一般式 (A) で表されるイリジウム錯体であることを特徴とする前記 8 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0030] [化1]

一般式(A)



[0031] (式中、 $A r_1$ は芳香族炭化水素環または芳香族複素環を表し、 $A r_2$ は芳香族複素環を表す。)

10. 前記イリジウム錯体の基底状態と三重項励起状態とのバンドギャップが2.7 eV以下であることを特徴とする前記8または9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0032] 11. 前記発光層を塗布する溶媒の双極子モーメントが1デバイ以上であることを特徴とする前記1～10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0033] 12. 白色に発光することを特徴とする前記1～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0034] 13. 前記1～12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

[0035] 14. 前記1～12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

発明の効果

[0036] 本発明により、高い発光輝度を示し、且つ低駆動電圧の有機エレクトロルミネッセンス素子、及び該素子を用いた照明装置、表示装置を提供することができた。

図面の簡単な説明

[0037] [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]画素の模式図である。

[図4]パッシブマトリクス方式フルカラー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]照明装置の断面図である。

発明を実施するための形態

[0038] 以下、本発明について詳述する。

[0039] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、請求項1～12

のいずれか1項に規定の構成にすることにより、高い発光輝度を示し、且つ低駆動電圧の有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができた。

[0040] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光層が少なくとも発光ドーパントとホスト化合物とを含有し、両者の双極子モーメントの差の絶対値が2デバイ以下であり、該発光層は塗布により形成されることを特徴とする。

[0041] なお、本発明において、双極子モーメントは汎用の計算機シミュレーションツールを用いて計算したものである。ほとんどの分子はChamb ridge software製Chem3D上でMOPAC97エンジンを用いてハミルトニアンAM1またはPM3で最適化構造を求めた。中心金属がIrなど重金属の場合は、非経験的分子軌道法により計算を行った。具体的には、Gaussian社製Gaussian98Wを用いて計算を行った。Ir等重金属を含む錯体の計算は、周期表の第3周期以下を有効殻ポテンシャルで表したLANL2DZ基底を用いた。

[0042] 以下、本発明の有機EL素子の構成層について説明する。

[0043] 《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。

- [0044] (i) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極
(ii) 陽極／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極
(iii) 陽極／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極
(iv) 陽極／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極
(v) 陽極／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極
(vi) 陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極

(vii) 陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極。

[0045] 《電子輸送層》

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

[0046] 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、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もでき、例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン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。

[0047] 更に上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

[0048] 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。

[0049] その他、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末

端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様にn型-Si、n型-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。

[0050] 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、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5 μ m程度、好ましくは5~200nmである。電子輸送層は上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

[0051] また、不純物をドーピングしたn性の高い電子輸送層を用いることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、同10-270172号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)等に記載されたものが挙げられる。

[0052] 本発明においては、このようなn性の高い電子輸送層を用いることがより低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

[0053] 《発光層》

本発明に係る発光層は、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及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。

[0054] 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、且つ駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、2nm~5 μ mの範囲に調整することが好ましく、更に好ましくは2~200nmの範囲に調整され、特に好ましくは10~20nmの範囲である。

[0055] 本発明に係る発光層の作製は、例えば、スピコート法、キャスト法、ダ

イコート法、インクジェット法などの塗布法で行われ、塗布溶媒の双極子モーメントについては、低すぎると発光ドーパント及びホスト化合物が均一に分散あるいは溶解しないために、好ましくは1デバイ以上である。複数種併用する場合は、平均値としての双極子モーメントを求め、塗布溶媒の双極子モーメントが1デバイ以上であれば、好ましい。

[0056] 本発明の有機EL素子の発光層には、ホスト化合物と発光ドーパント（リン光ドーパントや蛍光ドーパント等）の少なくとも1種類を含有する。

[0057] （ホスト化合物）

本発明に用いられるホスト化合物について説明する。

[0058] 本発明において、発光ドーパントとホスト化合物の双極子モーメントの差の絶対値が2デバイ以下であり、該ホスト化合物の双極子モーメントは4デバイ以上であることが好ましい。

[0059] 本発明において、ホスト化合物として、好ましくはカルバゾール誘導体あるいはアザカルバゾール誘導体であり、これらは窒素原子を有する5員あるいは6員の芳香族複素環基を有することが更に好ましい。窒素原子を有する5員あるいは6員の芳香族複素環基における芳香族複素環としては、ピリジン、イミダゾール、ピラジン、トリアジン、インドールまたはインダゾールが挙げられる。

[0060] ここで、本発明においてホスト化合物とは、室温（25℃）においてリン光発光のリン光量子収率が0.1未満の化合物である。好ましくはリン光量子収率が0.01未満である。また、発光層に含有される化合物の中で、その層中での質量比が20%以上であることが好ましい。

[0061] ホスト化合物としては、公知のホスト化合物を単独で用いてもよく、または複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。また、後述する発光ドーパントを複数種用いることで異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。複数種併用する場合は、平均値としての双極子モーメントを求め、発光ドーパント

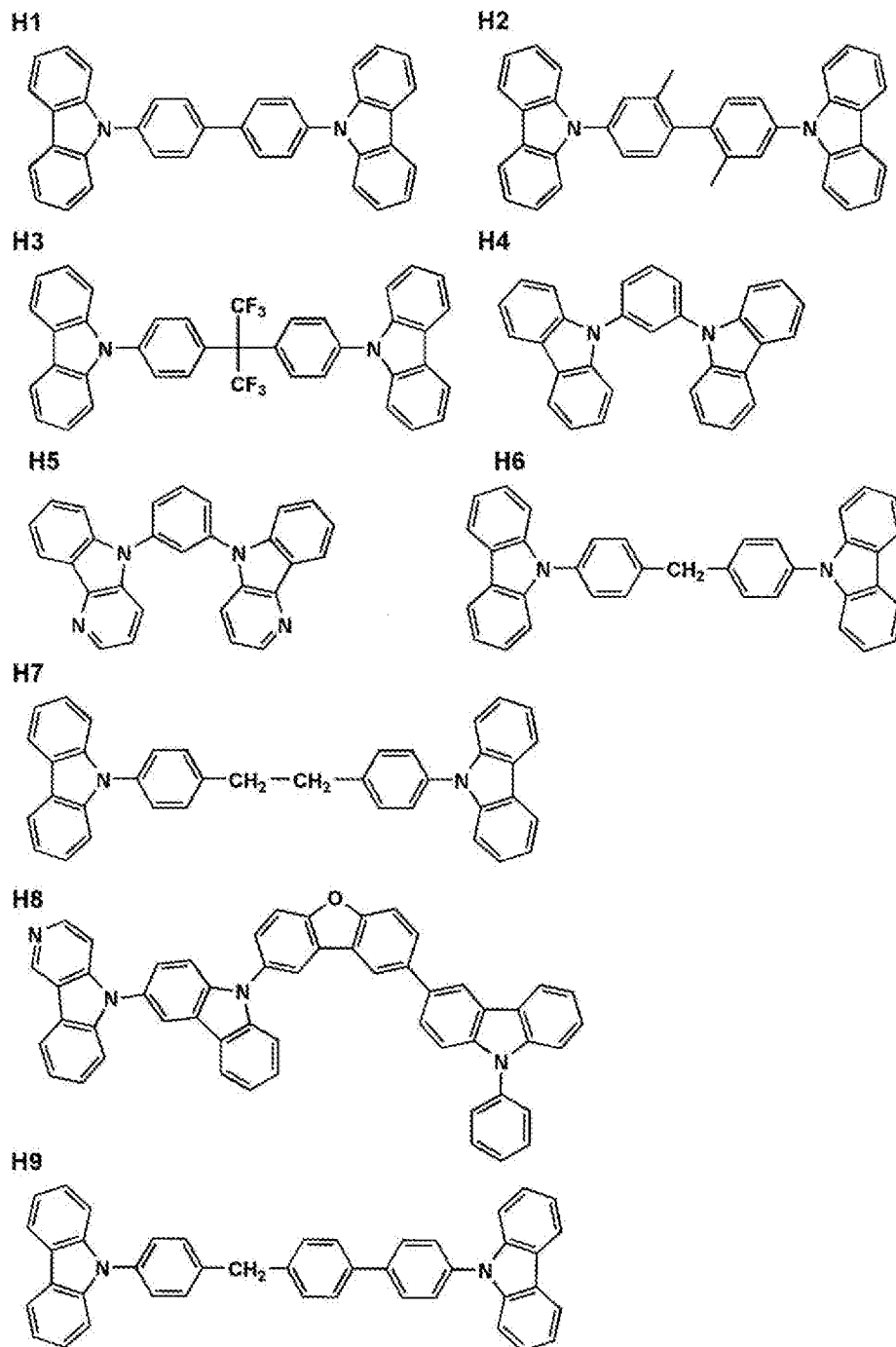
トの双極子モーメントとの差の絶対値が2 デバイ以下であれば、本発明内である。

[0062] 本発明に併用してもよい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、且つ発光の長波長化を防ぎ、なお且つ高T_g（ガラス転移温度）である化合物が好ましい。

[0063] 以下に、本発明に係るホスト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。

[0064]

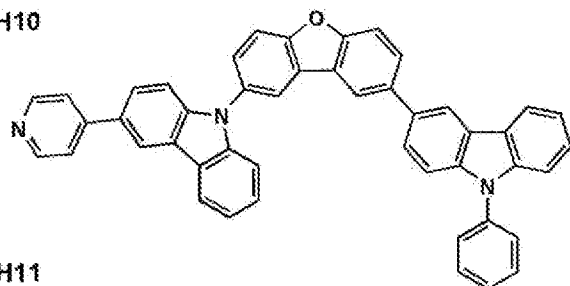
[化2]



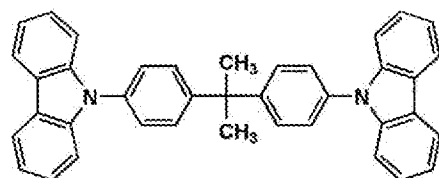
[0065]

[化3]

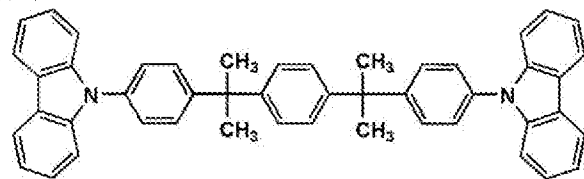
H10



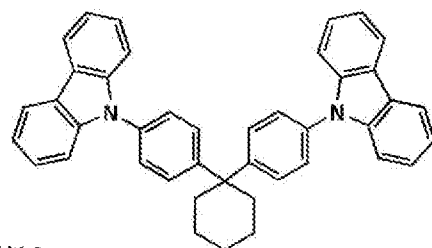
H11



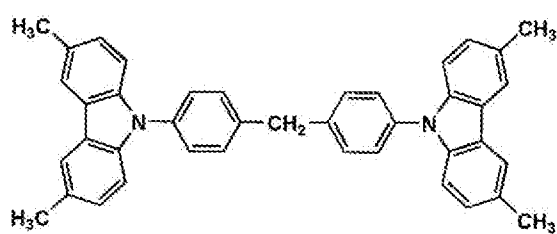
H12



H13



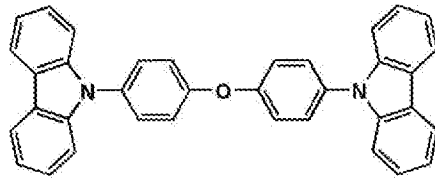
H14



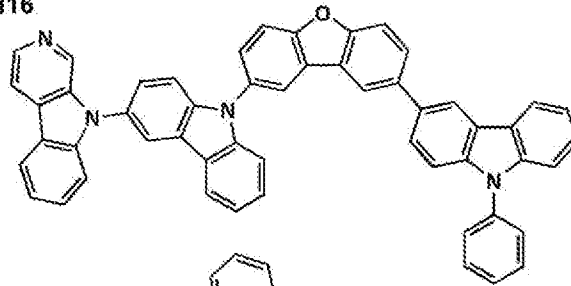
[0066]

[化4]

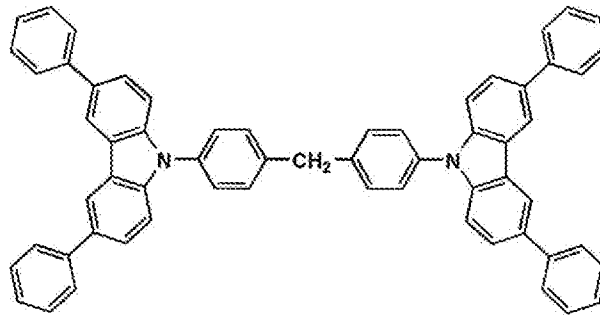
H15



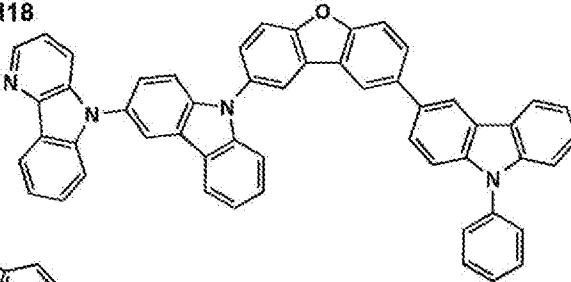
H16



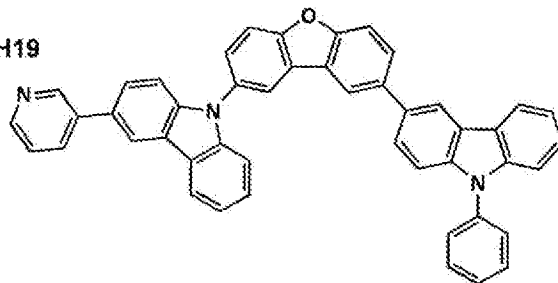
H17



H18

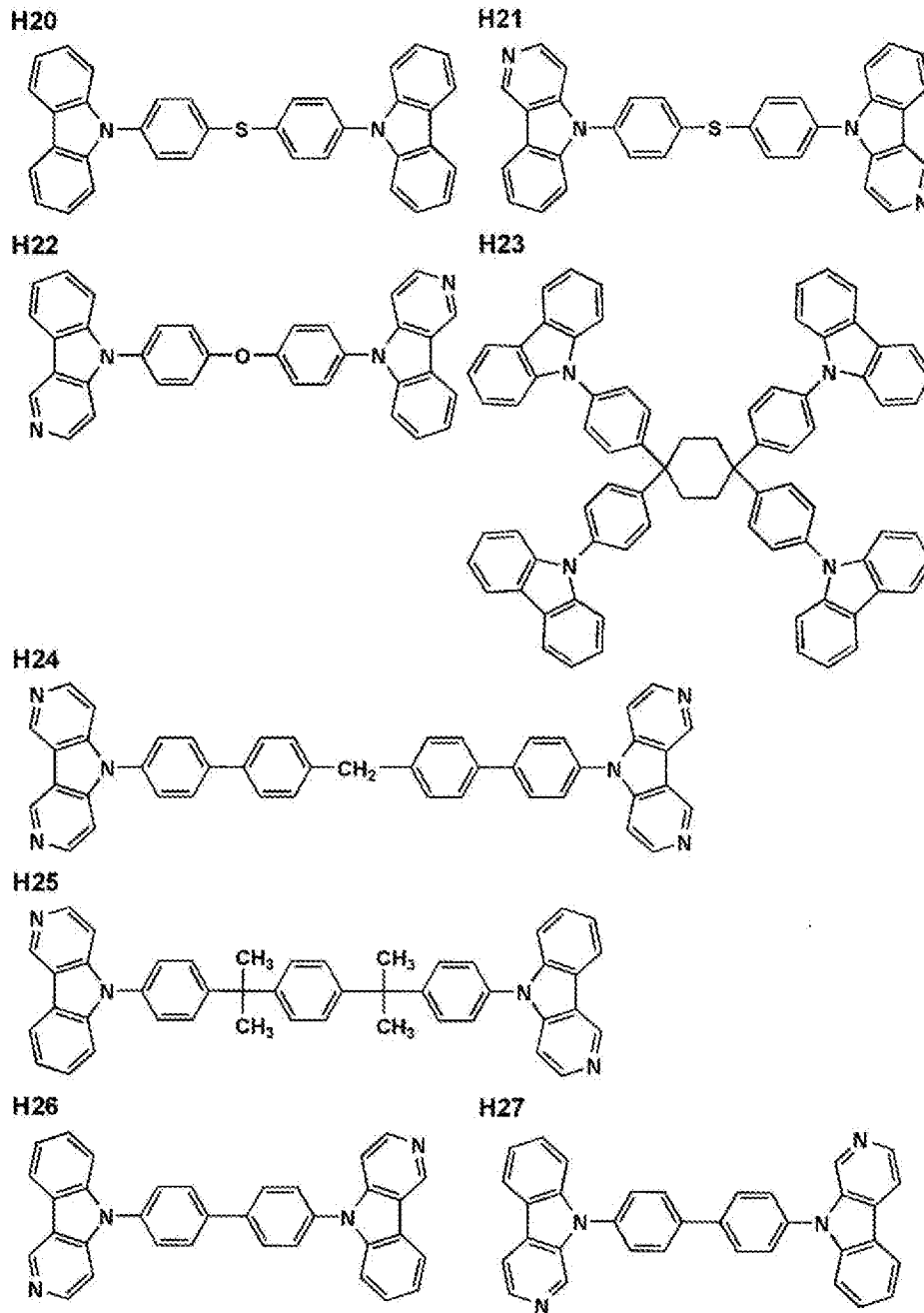


H19



[0067]

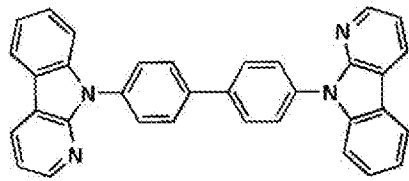
[化5]



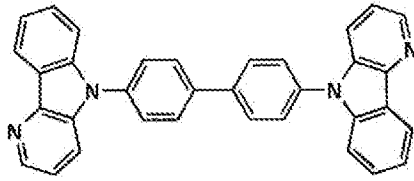
[0068]

[化6]

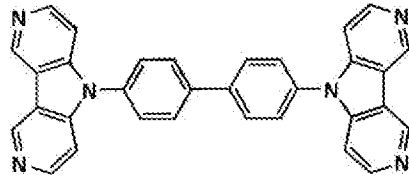
H28



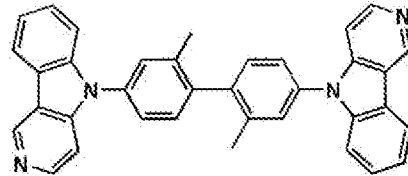
H29



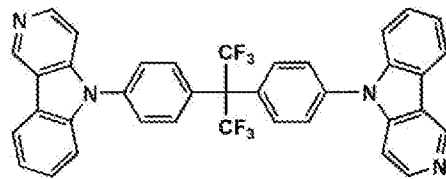
H30



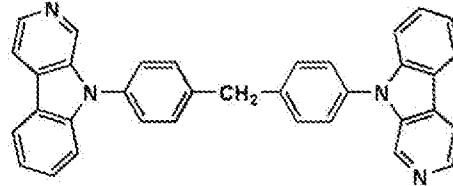
H31



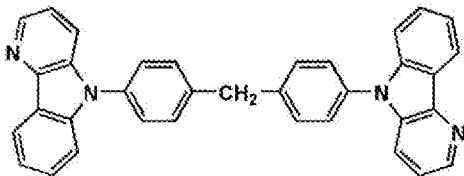
H32



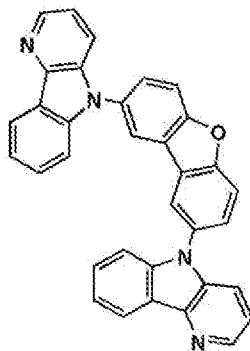
H33



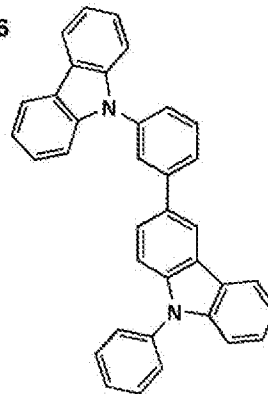
H34



H35

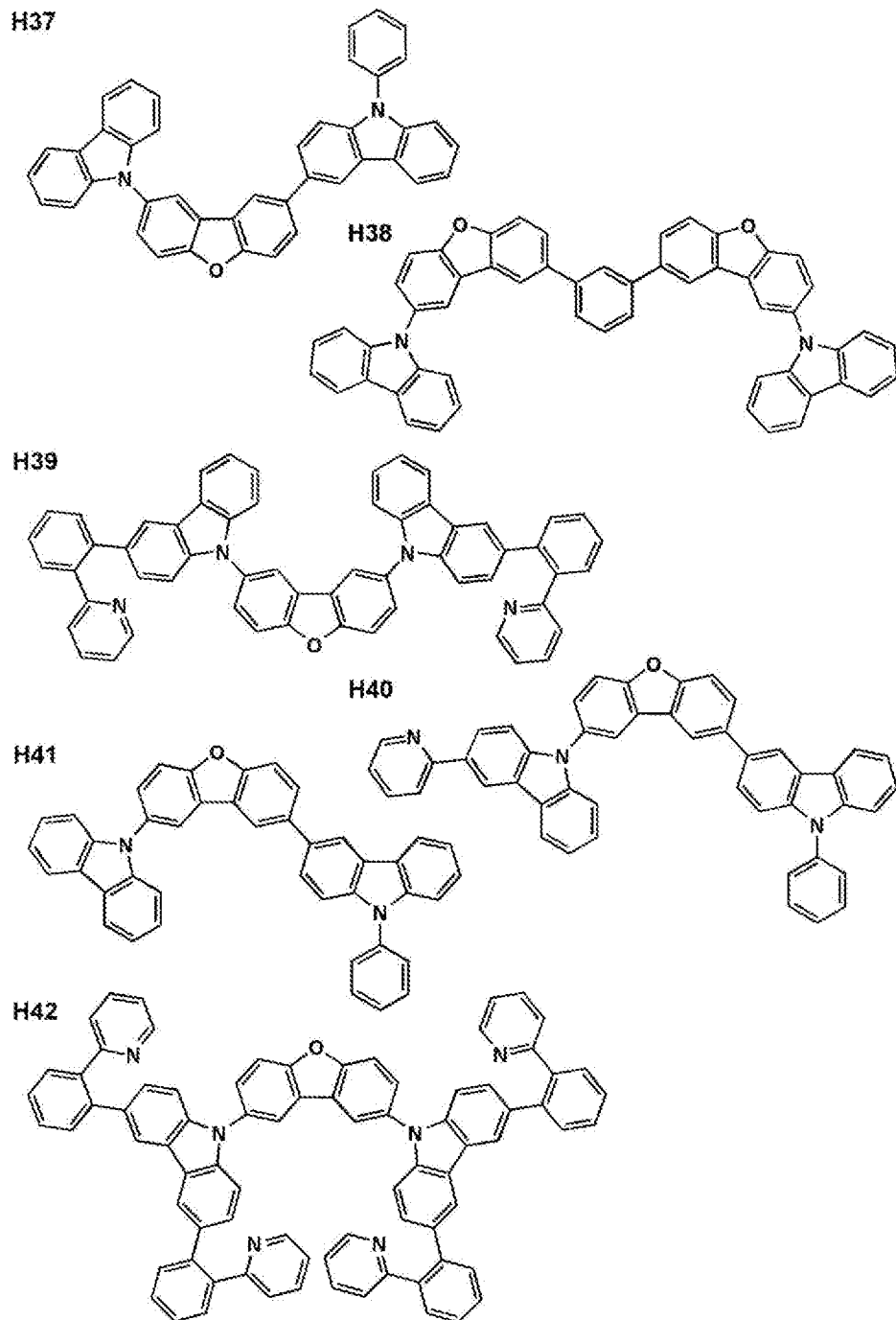


H36



[0069]

[化7]



[0070] また、本発明に係る代表的なホスト化合物の双極子モーメント（計算値）を表1に示した。

[0071]

[表1]

ホスト化合物	双極子モーメント(計算値、デバイ)
H 8	6.14
H10	5.52
H16	5.31
H18	4.85
H19	4.79
H39	3.83
H40	3.18
H41	1.96
H 1	0.04

[0072] 単独使用または併用してもよい公知のホスト化合物の具体例としては、更に以下の文献に記載されている化合物が挙げられる。

[0073] 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。

[0074] (発光ドーパント)

本発明に係る発光ドーパントについて説明する。

[0075] 本発明において、発光ドーパントの双極子モーメントについては、高くな

ると電荷輸送のトラップとなってしまう電荷輸送移動度が下がり、駆動電圧が上がる傾向にある。従って、発光ドーパントの双極子モーメントは特に限定はしないが、好ましくは4デバイ以下である。

[0076] 本発明に係る発光ドーパントとしては、蛍光ドーパント、リン光ドーパントを用いることができるが、より発光効率の高い有機EL素子を得る観点からは、本発明の有機EL素子の発光層や発光ユニットに使用される発光ドーパントとしては、本発明に係る上記のホスト化合物を含有すると同時にリン光ドーパントを含有することが好ましい。

[0077] 〈リン光ドーパント〉

本発明に係るリン光ドーパントについて説明する。

[0078] 本発明に係るリン光ドーパントは、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、具体的には、室温（25℃）にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が25℃において0.01以上の化合物であるが、好ましいリン光量子収率は0.1以上である。

[0079] 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頁（1992年版、丸善）に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に係るリン光ドーパントは、任意の溶媒のいずれかにおいて上記リン光量子収率（0.01以上）が達成されればよい。

[0080] リン光ドーパントの発光は原理としては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ドーパントに移動させることでリン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、もう一つはリン光ドーパントがキャリアトラップとなり、リン光ドーパント上でキャリアの再結合が起こりリン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。

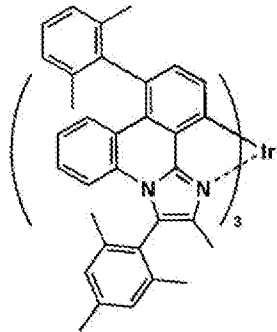
- [0081] リン光ドーパントは、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。
- [0082] 本発明に係るリン光ドーパントは、好ましくは元素の周期表で8～10族の金属を含有する錯体系化合物であり、更に好ましくはイリジウム錯体、オスミウム錯体、または白金錯体（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム錯体である。
- [0083] また、本発明においては、イリジウム錯体の基底状態と三重項励起状態とのバンドギャップが2.7 eV以下であることが好ましい。
- [0084] さらに、本発明においては、特に好ましくは、イリジウム錯体が前記一般式(A)で表されるイリジウム錯体であることである。
- [0085] 前記一般式(A)において、 $A r_1$ で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、 $A r_1$ で表される芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、シンノリン環、キノリン環、イソキノリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環（カルボリン環を構成する炭素原子の一つが更に窒素原子で置換されている環を示す）等が挙げられる。
- [0086] $A r_2$ で表される芳香族複素環としては、上述した $A r_1$ で表される芳香族複素環と同義である。

[0087] さらに、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0088] 以下に、本発明に係るリン光ドーパントの具体例とその双極子モーメント（計算値）を示す。

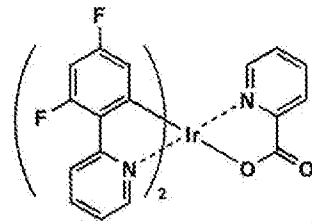
[0089] [化8]

BD-1



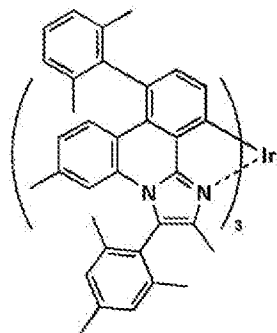
9.58

BD-2



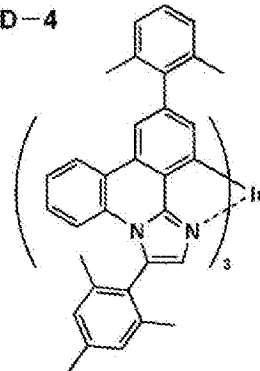
9.57

BD-3



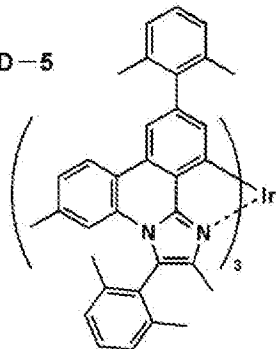
9.05

BD-4



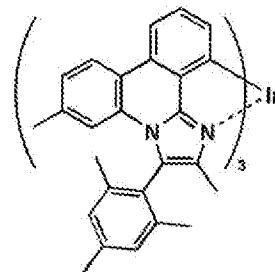
8.76

BD-5



8.39

BD-6

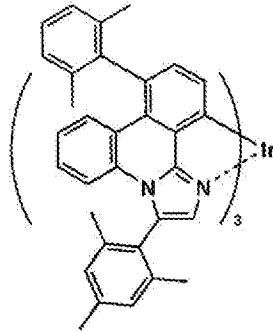


8.15

[0090]

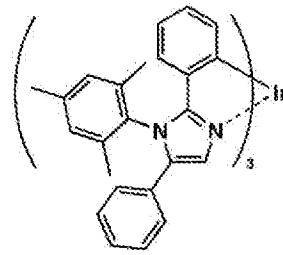
[化9]

BD-7



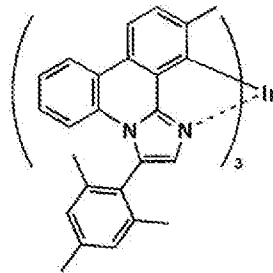
7.68

BD-8



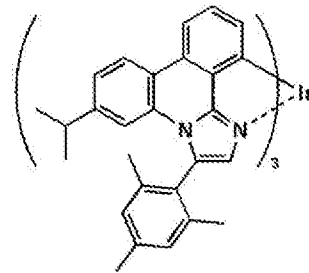
7.27

BD-9



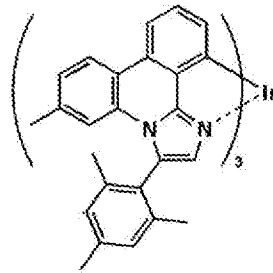
7.05

BD-10



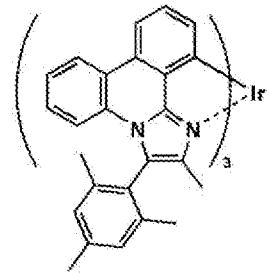
7.00

BD-11



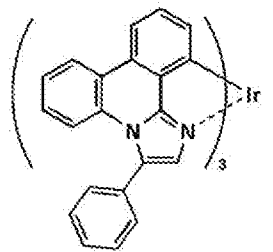
6.97

BD-12



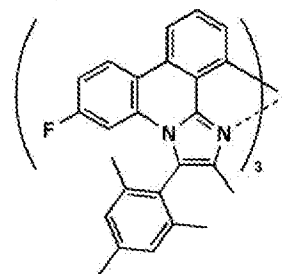
6.73

BD-13



6.61

BD-14

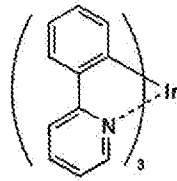


6.54

[0091]

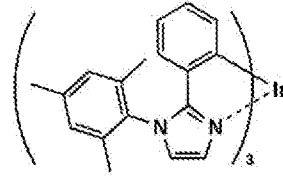
[化10]

BD-15



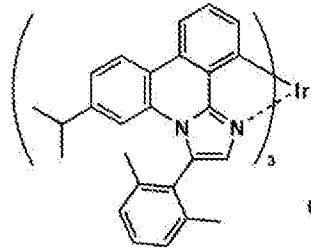
6.42

BD-16



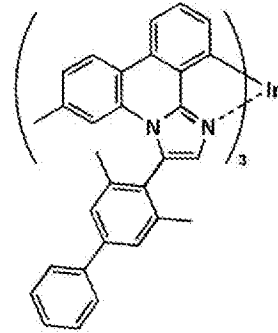
6.33

BD-17



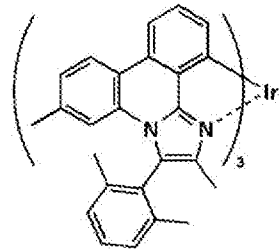
6.21

BD-18



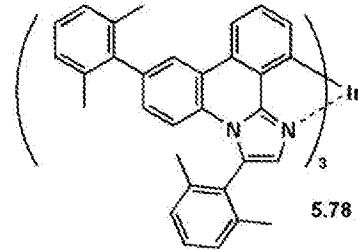
6.18

BD-19



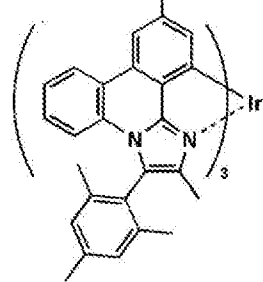
6.13

BD-20



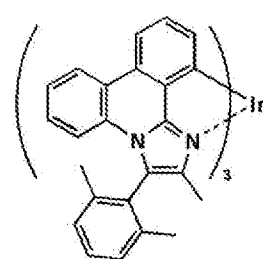
5.78

BD-21



5.75

BD-22

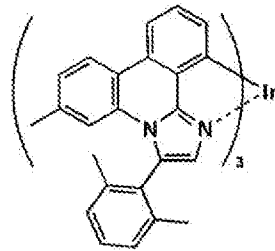


5.72

[0092]

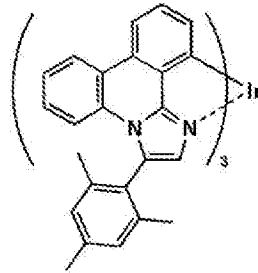
[化11]

BD-23



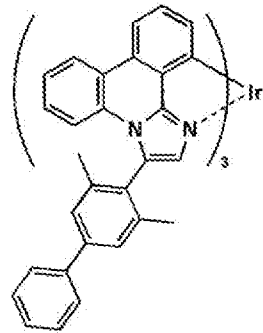
5.64

BD-24



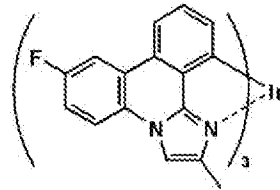
5.57

BD-25



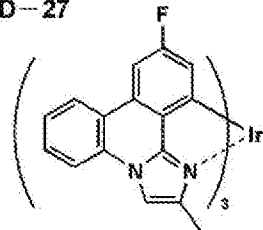
5.47

BD-26



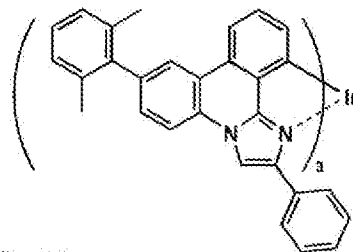
5.43

BD-27



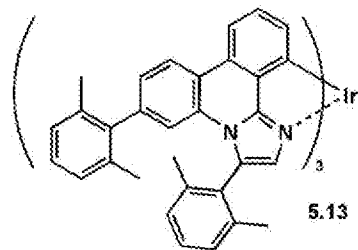
5.37

BD-28



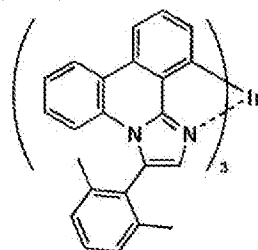
5.19

BD-29



5.13

BD-30

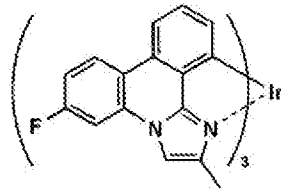


5.05

[0093]

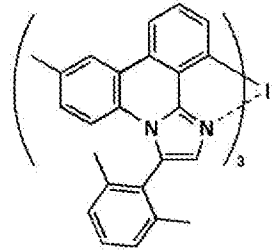
[化12]

BD-31



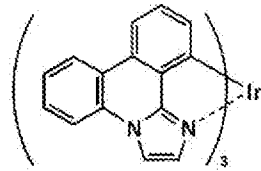
4.76

BD-32



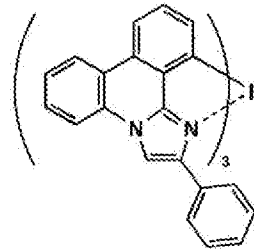
4.46

BD-33



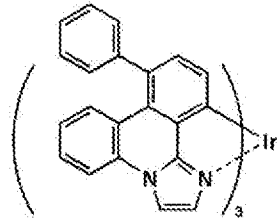
4.18

BD-34



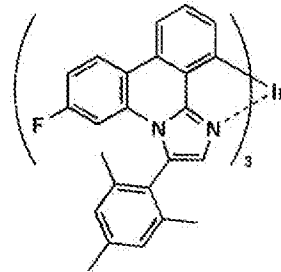
4.00

BD-35



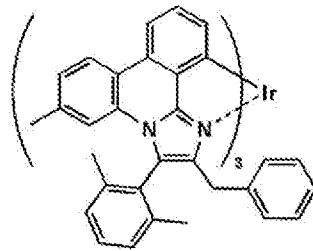
3.90

BD-36



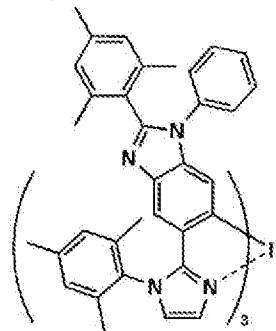
3.53

BD-37



3.49

BD-38

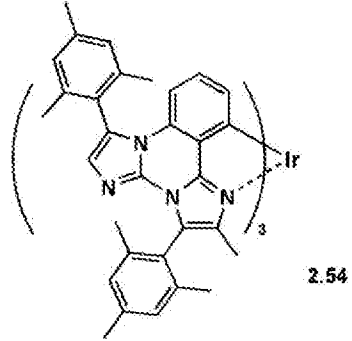


2.76

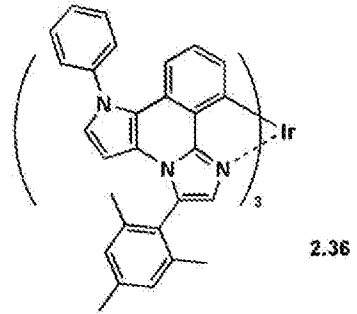
[0094]

[化13]

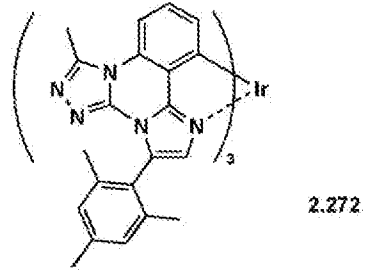
BD-39



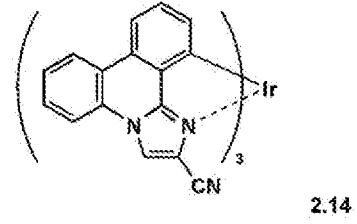
BD-40



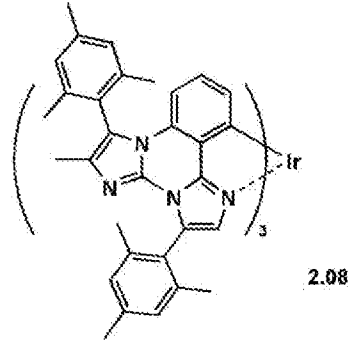
BD-41



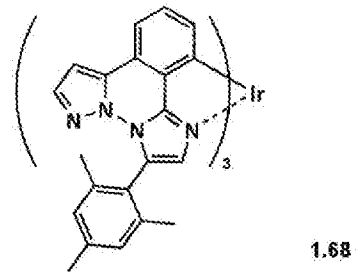
BD-42



BD-43

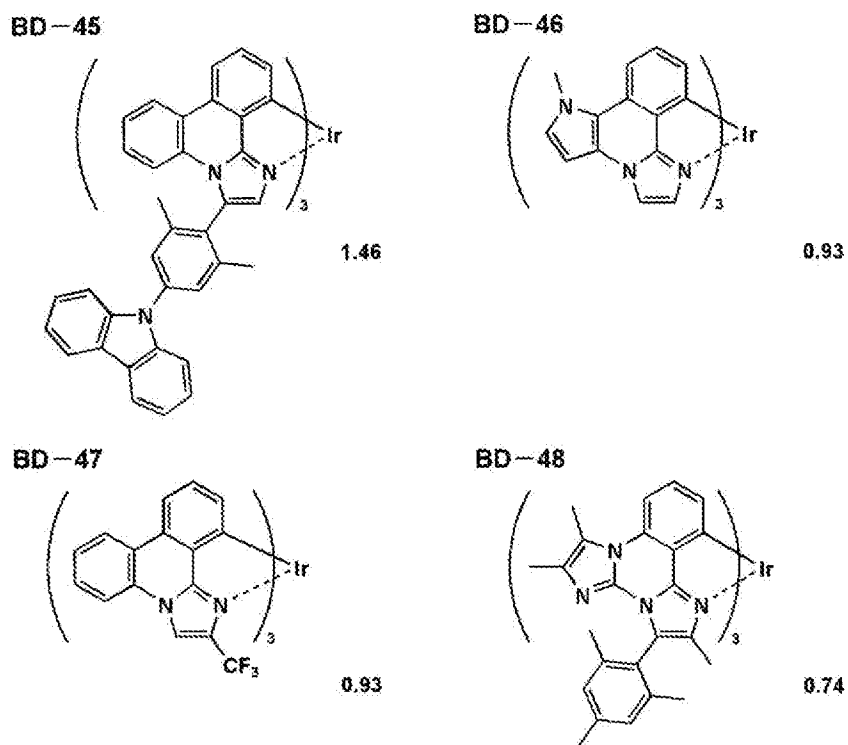


BD-44



[0095]

[化14]



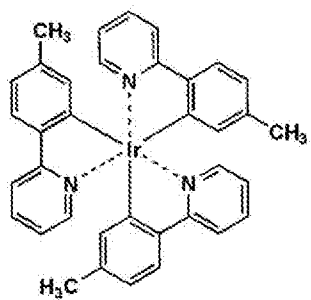
[0096] 発光ドーパントとしては、上記のリン光ドーパントの他に公知の発光ドーパントを単独で用いてもよく、または複数種併用して用いてもよい。複数種併用する場合は、平均値としての双極子モーメントを求め、ホスト化合物の双極子モーメントとの差の絶対値が2デバイ以下であれば、本発明内である。

[0097] 単独使用または本発明に係るリン光ドーパントと併用可能なリン光ドーパントの具体例としては、下記が挙げられる。

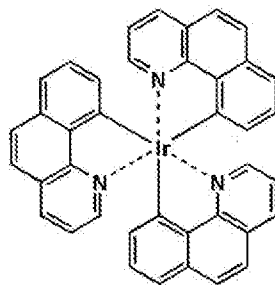
[0098]

[化15]

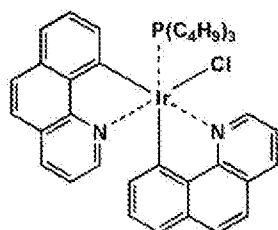
Ir-1



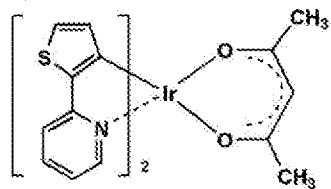
Ir-2



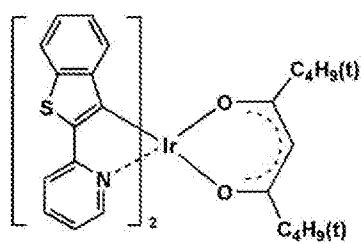
Ir-3



Ir-5

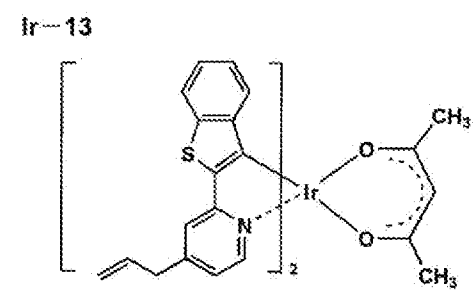
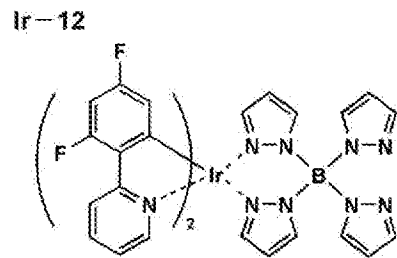
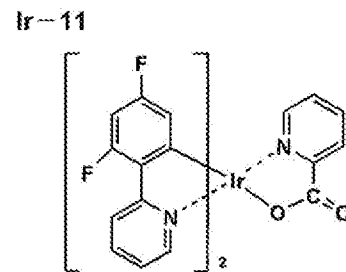
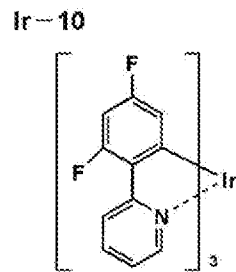
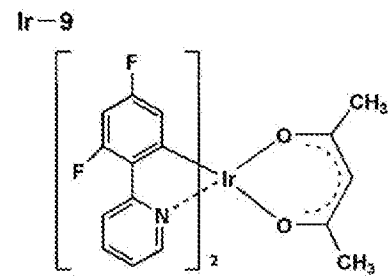
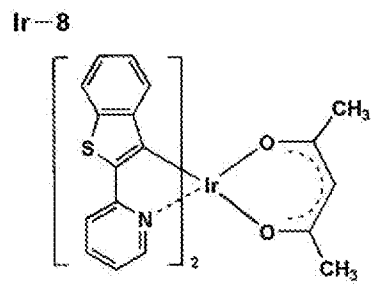
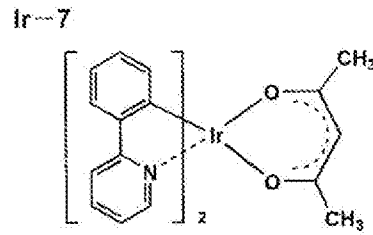
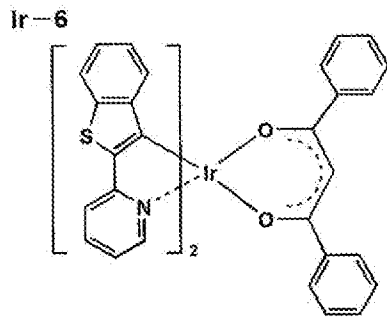


Ir-6



[0099]

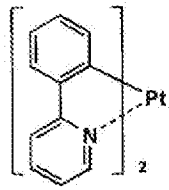
[化16]



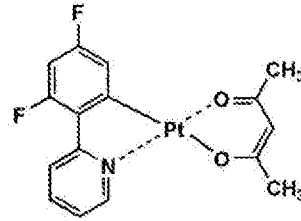
[0100]

[化17]

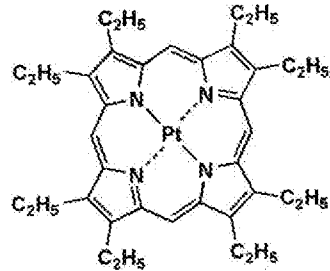
Pt-1



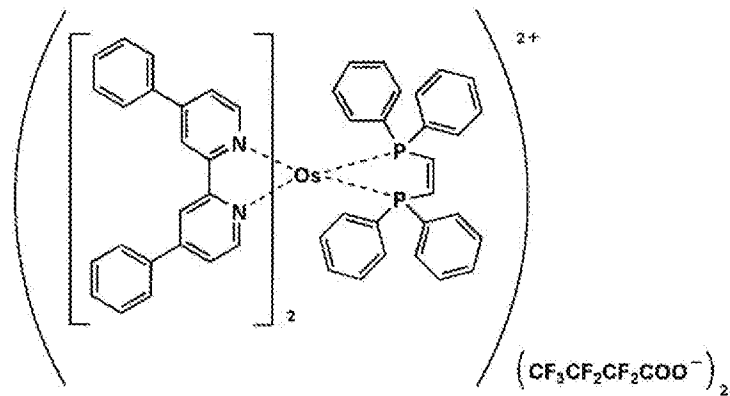
Pt-2



Pt-3



A-1



[0101] 〈蛍光ドーパント〉

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

[0102] 次に、本発明の有機EL素子の構成層として用いられる電荷輸送層、即ち、注入層、阻止層等について説明する。

[0103] 《注入層：電子注入層、正孔注入層》

注入層は必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記の如く陽極と発光層または正孔輸送層の間、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。

[0104] 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。

[0105] 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。

[0106] 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。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～5μmの範囲が好ましい。

[0107] 《阻止層：正孔阻止層、電子阻止層》

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

正孔阻止（ホールブロック）層がある。

[0108] 正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有し、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

[0109] 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。

[0110] 本発明の有機EL素子の正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられていることが好ましい。正孔阻止層には、前述のホスト化合物として挙げたカルバゾール誘導体、カルボリン誘導体、ジアザカルバゾール誘導体（カルボリン誘導体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。）を含有することが好ましい。

[0111] また、本発明においては、複数の発光色の異なる複数の発光層を有する場合、その発光極大波長が最も短波にある発光層が、全発光層中、最も陽極に近いことが好ましいが、このような場合、該最短波層と該層の次に陽極に近い発光層との間に正孔阻止層を追加して設けることが好ましい。更には、該位置に設けられる正孔阻止層に含有される化合物の50質量%以上が、前記最短波発光層のホスト化合物に対しそのイオン化ポテンシャルが0.3 eV以上大きいことが好ましい。

[0112] イオン化ポテンシャルは化合物のHOMO（最高被占分子軌道）レベルにある電子を真空準位に放出するのに必要なエネルギーで定義され、例えば下記に示すような方法により求めることができる。

[0113] (1) 米国Gaussian社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるGaussian98 (Gaussian98, Revision A.11.4, M. J. Frisch, et al, Gaussian, Inc., Pittsburgh PA, 2002.) を用い、キーワードとしてB3LYP/6-31G*を用いて構造最適化を行うことにより算出した値 (eV単位換算値) の小数点第2位を四捨五入した値としてイオン化ポテンシ

ルを求めることができる。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。

[0114] (2) イオン化ポテンシャルは光電子分光法で直接測定する方法により求めることもできる。例えば、理研計器社製の低エネルギー電子分光装置「Model AC-1」を用いて、あるいは紫外光電子分光として知られている方法を好適に用いることができる。

[0115] 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。

[0116] また、後述する正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。本発明に係る正孔阻止層、電子輸送層の膜厚としては、好ましくは3～100nmであり、更に好ましくは5～30nmである。

[0117] 《正孔輸送層》

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

[0118] 正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

[0119] 正孔輸送材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香

族第3級アミン化合物を用いることが好ましい。

[0120] 芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル; N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル) - [1, 1' -ビフェニル] -4, 4' -ジアミン(TPD); 2, 2-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N' -テトラ-*p*-トリル-4, 4' -ジアミノビフェニル; 1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル) -4-フェニルシクロヘキサン; ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N' -ジフェニル-N, N' -ジ(4-メトキシフェニル) -4, 4' -ジアミノビフェニル; N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4' -ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(*p*-トリル)アミン; 4-(ジ-*p*-トリルアミノ) -4' - [4-(ジ-*p*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン; 3-メトキシ-4' -N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン; N-フェニルカルバゾール、更には米国特許第5, 061, 569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4' -ビス[N-(1-ナフチル) -N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4'' -トリス[N-(3-メチルフェニル) -N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDATA)等が挙げられる。

[0121] 更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、*p*型-Si、*p*型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。また、特開平11-251067号公報、J. Huang et. a

1. 著文献 (Applied Physics Letters 80 (2002), p. 139) に記載されているような、所謂 p 型正孔輸送材料を用いることもできる。本発明においては、より高効率の発光素子が得られることからこれらの材料を用いることが好ましい。

[0122] 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、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5 nm~5 μm程度、好ましくは5~200 nmである。この正孔輸送層は上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

[0123] また、不純物をドーピングした p 性の高い正孔輸送層を用いることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報の各公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004) 等に記載されたものが挙げられる。本発明においては、このような p 性の高い正孔輸送層を用いることがより低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

[0124] 《陽極》

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)、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。

[0125] また、IDIXO (In₂O₃-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、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。

[0126] 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 Ω/\square 以下が好ましい。更に膜厚は材料にもよるが、通常10~1000nm、好ましくは10~200nmの範囲で選ばれる。

[0127] 《陰極》

一方、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。

[0128] 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。

[0129] 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~5 μm 、好ましくは50~200nm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。

[0130] また、陰極に上記金属を1~20nm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。

[0131] 《支持基板》

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、支持体等とも言う）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。

[0132] 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。

[0133] 樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）等のポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロファン、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）、セルロースアセテートフタレート（TAC）、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類またはそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリルあるいはポリアリレート類、アトロン（商品名JSR社製）あるいはアペル（商品名三井化学社製）といったシクロオレフィン系樹脂等を挙げられる。

[0134] 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、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ 25 ± 0.5 ℃、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、更には 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 $10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

[0135] 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、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。更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。

[0136] バリア膜の形成方法については特に限定はなく、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマ CVD 法、レーザー CVD 法、熱 CVD 法、コーティング法等を用いることができるが、特開 2004-68143 号公報に記載の大気圧プラズマ重合法によるものが特に好ましい。

[0137] 不透明な支持基板としては、例えば、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。

[0138] 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。

[0139] 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 480 nm 以下が好ましい。

[0140] 《封止》

本発明に用いられる封止手段としては、例えば、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。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おればよく、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。

- [0141] 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、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。
- [0142] 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。更には、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 $1 \times 10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 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。
- [0143] 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。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及び熱硬化型接着剤、2-シアノアクリル酸エステル等の湿気硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系等の熱及び化学硬化型（二液混合）を挙げることができる。また、ホットメルト型のポリアミド、ポリエステル、ポリオレフィンを挙げることができる。また、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポ

キシ樹脂接着剤を挙げることができる。

- [0144] 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°Cまでに接着硬化できるものが好ましい。また、前記接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。
- [0145] 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。
- [0146] 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、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。
- [0147] 更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、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができる。
- [0148] 封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相及び液相では、窒素、アルゴン等の不活性気体やフッ化炭化水素、シリコンオイルのような不活性液体を注入することが好ましい。また真空とすることも可能である。また、内部に吸湿性化合物を封入することもできる。吸湿性化合物としては、例えば、金属酸化物（例えば、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム等）、硫酸塩（例えば、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸コバルト等）、金属ハロゲン化物（例えば、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、フッ化セシウム、フッ化タンタル、臭化セリウム、臭化マグネシウム、沃化バリウム、沃化マグネシウム等）、過塩素酸類（例えば、過塩素酸バリウム、過塩素酸マグネシウム等）等が挙げられ、硫酸塩、金属ハロゲン化物及び

過塩素酸類においては無水塩が好適に用いられる。

[0149] 《保護膜、保護板》

有機層を挟み支持基板と対向する側の前記封止膜、あるいは前記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。特に封止が前記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、前記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、軽量且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。

[0150] 《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程度）層の内部で発光し、発光層で発生した光の内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。

[0151] この光の取り出しの効率を向上させる手法としては、例えば、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4,774,435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）、有機EL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11-283751号公報）等がある。

- [0152] 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。
- [0153] 本発明はこれらの手段を組み合わせることにより、更に高輝度あるいは耐久性に優れた有機EL素子を得ることができる。
- [0154] 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。
- [0155] 低屈折率層としては、例えば、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く、更に好ましくは1.35以下であることが好ましい。
- [0156] 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。
- [0157] 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次の回折といった所謂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内、層間での全反射等により外に出ることができない光を、いずれかの層間もしくは、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。
- [0158] 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。

[0159] 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。

[0160] 回折格子を導入する位置としては前述の通り、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。

[0161] このとき、回折格子の周期は媒質中の光の波長の約 $1/2 \sim 3$ 倍程度が好ましい。

[0162] 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。

[0163] 《集光シート》

本発明の有機EL素子は基板の光取り出し側に、例えば、マイクロレンズアレイ状の構造を設けるように加工し、あるいは所謂集光シートと組み合わせることにより、特定方向、例えば、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。

[0164] 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 度となるような四角錐を2次元に配列する。一辺は $10 \sim 100 \mu\text{m}$ 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く、大きすぎると厚みが厚くなり好ましくない。

[0165] 集光シートとしては、例えば、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、例えば、住友スリーエム製輝度上昇フィルム（BEF）等を用いることができる。

[0166] プリズムシートの形状としては、例えば、基材に頂角 90 度、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。

[0167] 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。例えば、(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。

[0168] 《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。

[0169] 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 $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10\sim 200\text{nm}$ 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。

[0170] 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、スピコート法、キャスト、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、且つピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法またはスピコート法が特に好ましい。更に層毎に異なる製膜法を適用してもよいが、本発明の発光層は塗布により製膜され、好ましくはスピコート法である。

[0171] 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 $50\sim 450^\circ\text{C}$ 、真空度 $10^{-6}\sim 10^{-2}\text{Pa}$ 、蒸着速度 $0.01\sim 50\text{nm}/\text{秒}$ 、基板温度 $-50\sim 300^\circ\text{C}$ 、膜厚 $0.1\sim 5\mu\text{m}$ 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 $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $50\sim 200\text{nm}$ 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。

[0173] また、作製順序を逆にして、陰極、陰極バッファ層、電子輸送層、正孔阻止層、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。

- [0174] 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 V～40 V 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。
- [0175] 本発明の有機 EL 素子の作製は、発光層は塗布により作製されるが、その他の層は異なる製膜法を施しても構わない。真空引きで作製する際、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。
- [0176] 《用途》
- 本発明の有機 EL 素子は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。発光光源として、例えば、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。
- [0177] 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、電極のみをパターニングしてもよいし、電極と発光層をパターニングしてもよいし、素子全層をパターニングしてもよく、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。
- [0178] 本発明の有機 EL 素子や本発明に係る化合物の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩学会編、東京大学出版会、1985）の 108 頁の図 4. 16 において、分光放射輝度計 CS-1000（コニカミノルタセンシング製）で測定した結果を CIE 色度座標に当てはめたときの色で決定される。また、本発明に係る有機 EL 白色素子の白色とは、2 度視野角正面輝度を上記方法により測定した際に 1000 cd/m²での色温度が 7000 K～2500 K（黒体軌跡からの偏差 $\Delta u v = \pm 0.02$ ）の領域内にあることを言う。

[0179] 《表示装置》

本発明の表示装置について説明する。

[0180] 本発明の表示装置は、本発明の有機EL素子を具備したものである。

[0181] 表示装置に具備される有機EL素子の構成は、必要に応じて上記の有機EL素子の構成例の中から選択される。

[0182] また、有機EL素子の製造方法は、上記の本発明の有機EL素子の製造の一態様に示した通りである。

[0183] 得られた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。更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。

[0184] 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。

[0185] 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、単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。

[0186] 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、本発明はこれらに限定されない。

[0187] 以下、本発明の有機EL素子を有する表示装置の一例を図面に基づいて説明する。

[0188] 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。

- [0189] 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。
- [0190] 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毎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。
- [0191] 図 2 は表示部 A の模式図である。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。
- [0192] 図においては、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。
- [0193] 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（詳細は図示していない）。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。
- [0194] 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。
- [0195] 次に、画素の発光プロセスを説明する。
- [0196] 図 3 は画素の模式図である。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。
- [0197] 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。

[0198] 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。

[0199] 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。

[0200] 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。

[0201] 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。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。

[0202] 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。

- [0203] 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。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。
- [0204] 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。
- [0205] 《照明装置》
本発明の照明装置について説明する。本発明の照明装置は上記有機EL素子を有する。
- [0206] 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。
- [0207] 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。
- [0208] 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、単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。または、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。
- [0209] また、本発明の有機EL材料は照明装置として、実質白色の発光を生じる有機EL素子に適用できる。複数の発光ドーパント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よい。

[0210] また、複数の発光色を得るための発光ドーパントの組み合わせは、複数のリン光または蛍光で発光する材料を複数組み合わせたもの、蛍光またはリン光で発光する発光ドーパントと、発光ドーパントからの光を励起光として発光する色素材料との組み合わせたもののいずれでもよいが、本発明に係る白色有機EL素子においては、発光ドーパントを複数組み合わせ混合するだけでよい。発光層、正孔輸送層あるいは電子輸送層等の形成時のみマスクを設け、マスクにより塗り分ける等単純に配置するだけでよく、他層は共通であるのでマスク等のパターンニングは不要であり、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、印刷法等で例えば電極膜を形成でき、生産性も向上する。

[0211] この方法によれば、複数色の発光素子をアレー状に並列配置した白色有機EL装置と異なり、素子自体が発光白色である。

[0212] 発光層に用いる発光ドーパントとしては特に制限はなく、例えば、液晶表示素子におけるバックライトであれば、CF（カラーフィルター）特性に対応した波長範囲に適合するように、本発明に係る金属錯体、また公知の発光ドーパントの中から任意のものを選択して組み合わせることで白色化すればよい。

[0213] 《本発明の照明装置の一態様》

本発明の有機EL素子を具備した、本発明の照明装置の一態様について説明する。

[0214] 本発明の有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300 μ mのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成製ラックストラックLC0629B）を適用し、これを陰極上に重ねて透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して、硬化させて、封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成することができる。

[0215] 図5は照明装置の概略図を示し、本発明の有機EL素子101はガラスカバー102で覆われている（なお、ガラスカバーでの封止作業は、有機EL

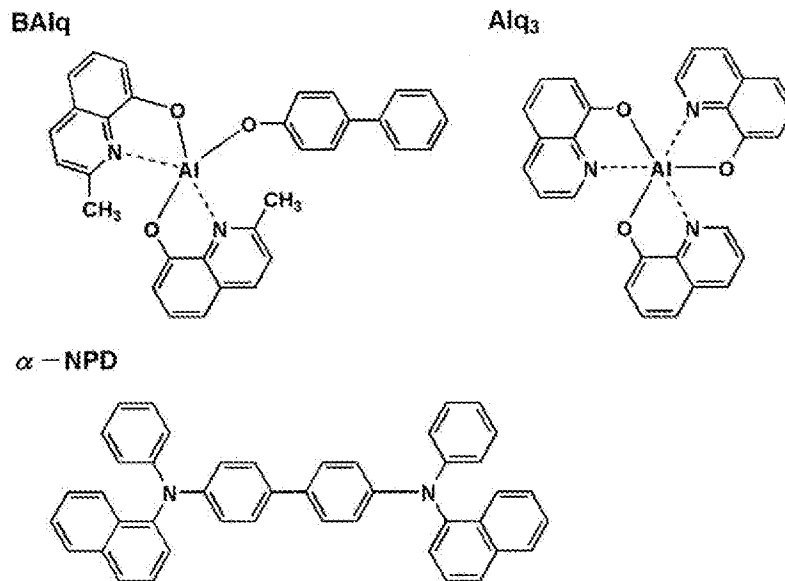
素子 101 を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度 99.999% 以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った。）。

[0216] 図 6 は照明装置の断面図を示し、図 6 において、105 は陰極、106 は有機 EL 層、107 は透明電極付きガラス基板を示す。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。

実施例

[0217] 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。また、以下の実施例において用いられる化合物の構造を下記に示す。

[0218] [化18]



[0219] 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 150 nm 成膜した基板（NH テクノガラス製：NA-45）にパターニングを行った後、この ITO 透明電極を設けた透明支持基板を *isopropyl alcohol* 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。

[0220] 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 3 つのタンタル製抵抗加熱ポートに α -NPD、BAlq、Alq₃ をそれぞれ

入れ、真空蒸着装置（第1真空槽）に取り付けた。

[0221] 更に、タンタル製抵抗加熱ポートにフッ化リチウムをタングステン製抵抗加熱ポ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。

[0222] まず、第1の真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、 α -NPDの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \sim 0.2$ nm/秒で透明支持基板に膜厚 20 nmの厚さになるように蒸着し、正孔注入/輸送層を設けた。

[0223] 続いて、 5 mgのBD-15（バンドギャップ 2.51 eV）を 1 Lのメタノールとアセトニトリルの混合溶媒（メタノール/アセトニトリル= $85/15$ ）に溶解した溶液を調製し、この溶液 10 mlで 50 mgのH1を溶解し、塗布液を調製した。なお、メタノールの双極子モーメントは 1.7 、アセトニトリルの双極子モーメントは 3.92 であることより、混合溶媒（メタノール/アセトニトリル= $85/15$ ）の双極子モーメントは、溶媒の混合比から擬似的に $1.7 \times 0.85 + 3.92 \times 0.15 = 2.03$ とする。この塗布液にて上記層上に 1500 rpm、 30 秒の条件下、スピコート法により製膜し発光層を設けた。

[0224] 次いで、BaIqの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \sim 0.2$ nm/秒で厚さ 10 nmの正孔阻止層を設けた。更にAlq₃の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \sim 0.2$ nm/秒で膜厚 20 nmの電子輸送層を設けた。

[0225] 次に、電子輸送層まで成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。

[0226] 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ポートに通電して蒸着速度 $0.01 \sim 0.02$ nm/秒で膜厚 0.5 nmの陰極バッファ層を設け、次いでアルミニウムの入ったポートに通電して、蒸着速度 $1 \sim 2$ nm/秒で膜厚 150 nmの陰極をつけ、有機EL素子1を作製

した。

[0227] 《有機EL素子2～25の作製》

有機EL素子1の作製において、発光層のBD-15及びH1を表2の評価結果の欄に記載の組み合わせに変更した以外は同様にして、有機EL素子2～25を作製した。

[0228] 《有機EL素子の評価》

得られた有機EL素子1～25を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300 μ mのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成製ラックストラックLC0629B）を適用し、これを上記陰極上に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して、硬化させて、封止して、図5、図6に示すような照明装置を形成して評価した。

[0229] 図5は照明装置の概略図を示し、有機EL素子101はガラスカバー102で覆われている（なお、ガラスカバーでの封止作業は、有機EL素子101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の雰囲気下）で行った）。

[0230] 図6は照明装置の断面図を示し、図6において、105は陰極、106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板を示す。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。

[0231] （外部取り出し量子効率）

有機EL素子を室温（約23～25 $^{\circ}$ C）、2.5mA/cm²の定電流条件下による点灯を行い、点灯開始直後の発光輝度（L）[cd/m²]を測定することにより、外部取り出し量子効率（ η_{ext} ）を算出した。

[0232] ここで、発光輝度の測定はCS-1000（コニカミノルタセンシング製）を用いた。

[0233] 外部取り出し量子効率は有機EL素子1を100とする相対値で表した。

[0234] （駆動電圧）

有機EL素子を室温（約23℃～25℃）、2.5 mA/cm²の定電流条件下により駆動したときの電圧を各々測定し、測定結果を下記に示すように、有機EL素子1（比較例）を100として各々相対値で示した。

[0235] 電圧 = (各素子の駆動電圧 / 有機EL素子1の駆動電圧) × 100
なお、値が小さいほうが比較に対して駆動電圧が低いことを示す。

[0236]

[表2]

素子 No.	発光ドーパント	発光ドーパントの双極子モーメント (デバイ)	ホスト化合物	ホスト化合物の双極子モーメント (デバイ)	発光ドーパントとホスト化合物の双極子モーメントの差 (デバイ)	外部光取り出し量子効率 (%)	駆動電圧 (%)	備考
1	BD-15	6.42	H1	0.04	6.38	100	100	比較
2	BD-15	6.42	H41	1.96	4.46	102	99	比較
3	BD-15	6.42	H18	4.85	1.57	133	80	本発明
4	BD-15	6.42	H8	6.14	0.28	135	79	本発明
5	BD-36	3.53	H41	1.96	1.57	143	77	本発明
6	BD-36	3.53	H18	4.85	-1.32	158	75	本発明
7	BD-15	6.42	H39	3.83	2.59	103	97	比較
8	BD-16	6.33	H1	0.04	6.29	100	100	比較
9	BD-16	6.33	H41	1.96	4.37	101	99	比較
10	BD-16	6.33	H18	4.85	1.48	134	81	本発明
11	BD-16	6.33	H16	5.31	1.02	135	78	本発明
12	BD 16	6.33	H19	4.79	1.54	142	75	本発明
13	BD-16	6.33	H8	6.14	0.19	160	75	本発明
14	BD-16	6.33	H10	5.52	0.81	162	73	本発明
15	BD-17	6.21	H1	0.04	6.17	100	100	比較
16	BD-17	6.21	H41	1.96	4.25	99	100	比較
17	BD-17	6.21	H18	4.85	1.36	128	83	本発明
18	BD-17	6.21	H16	5.31	0.90	125	79	本発明
19	BD-17	6.21	H19	4.79	1.42	136	74	本発明
20	BD-17	6.21	H8	6.14	0.07	140	73	本発明
21	BD-17	6.21	H10	5.52	0.69	155	70	本発明
22	BD-37	3.49	H8	6.14	-2.65	100	100	比較
23	BD-37	3.49	H40	3.18	0.31	145	75	本発明
24	BD-37	3.49	H18	4.85	-1.36	148	72	本発明
25	BD-37	3.49	H19	4.79	1.30	157	71	本発明

[0237] 上記から、本発明の有機EL素子3~6、10~14、17~21及び23~25は比較の有機EL素子1、2、7、8、9、15、16及び22に

比べ、高い発光効率と駆動電圧の低下を達成できることが明らかである。なお、実施例で用いた発光ドーパントのバンドギャップは、それぞれ、BD-16 (2.66 eV)、BD-17 (2.70 eV)、BD-36 (2.70 eV)、BD-37 (2.70 eV) である。

[0238] 実施例 2

《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 5 を青色発光素子として用いた。

[0239] (緑色発光素子の作製)

実施例 1 の有機 EL 素子 5 において、BD-36 を BD-15 に変更した以外は、同様にして緑色発光素子を作製し、これを緑色発光素子として用いた。

[0240] (赤色発光素子の作製)

実施例 1 の有機 EL 素子 5 において、BD-36 を Ir-8 に変更した以外は、同様にして、赤色発光素子を作製し、これを赤色発光素子として用いた。

[0241] 上記で作製した赤色、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た。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。

[0242] 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)。

[0243] 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。

[0244] このフルカラー表示装置は駆動することにより、輝度が高く、高耐久性を有し、且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。

[0245] 実施例3

《白色発光素子及び白色照明装置の作製》

実施例1の透明電極基板の電極を20mm×20mmにパターニングし、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の厚さで成膜し、BD-36、BD-15、及びIr-8をそれぞれ5mgずつ計りとり混合し、1Lのメタノールとアセトニトリルの混合溶媒（メタノール／アセトニトリル=85／15）に溶解した溶液を調製し、この溶液10mlで50mgのH8を溶解し、塗布液を調製した。この塗布液にて上記層上に1500rpm、30秒の条件下、スピコート法により製膜し発光層を設けた。

[0246] 次に、BAIqを10nm成膜して正孔阻止層を設けた。更に、H42を40nmで成膜し、電子輸送層を設けた。

[0247] 次に、実施例1と同様に電子注入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を蒸着成膜した。

[0248] この素子を実施例1と同様な方法及び同様な構造の封止缶を具備させ、図5、図6に示すような平面ランプを作製した。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。

符号の説明

- [0249] 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

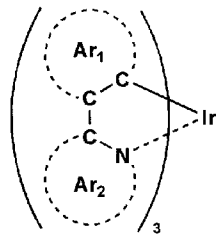
請求の範囲

- [請求項1] 支持基板上に少なくとも陽極、陰極を有し、該陽極と該陰極間に少なくとも有機物からなる発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層は少なくとも発光ドーパントとホスト化合物とを含有し、該発光ドーパントと該ホスト化合物の双極子モーメントの差の絶対値が2 デバイ以下であり、該発光層は塗布により形成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。
- [請求項2] 前記ホスト化合物の双極子モーメントが4 デバイ以上であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項3] 前記ホスト化合物がカルバゾール誘導体あるいはアザカルバゾール誘導体であることを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項4] 前記カルバゾール誘導体あるいはアザカルバゾール誘導体が窒素原子を有する5員あるいは6員の芳香族複素環基を有することを特徴とする請求項3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項5] 前記窒素原子を有する5員あるいは6員の芳香族複素環基における芳香族複素環がピリジン、イミダゾール、ピラジン、トリアジン、インドールまたはインダゾールであることを特徴とする請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項6] 前記発光ドーパントの双極子モーメントが4 デバイ以下であることを特徴とする請求項1～5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項7] 前記発光ドーパントがリン光ドーパントであることを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項8] 前記リン光ドーパントがイリジウム錯体であることを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項9] 前記イリジウム錯体が、下記一般式（A）で表されるイリジウム錯

体であることを特徴とする請求項 8 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化1]

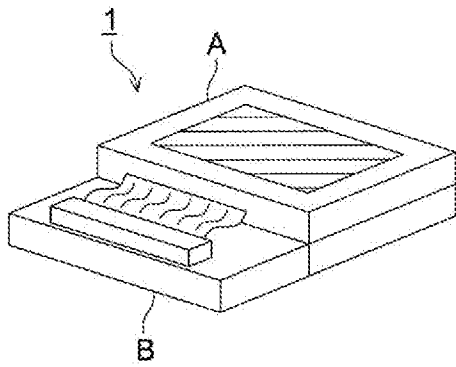
一般式(A)



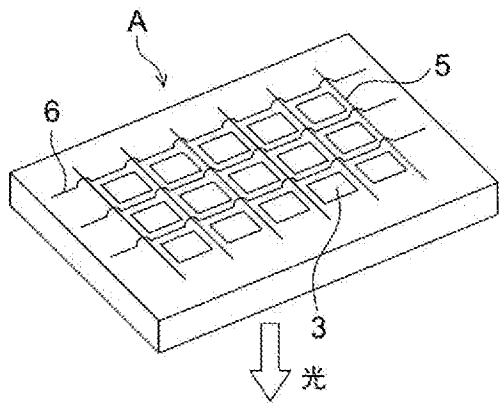
(式中、Ar₁は芳香族炭化水素環または芳香族複素環を表し、Ar₂は芳香族複素環を表す。)

- [請求項10] 前記イリジウム錯体の基底状態と三重項励起状態とのバンドギャップが2.7 eV以下であることを特徴とする請求項 8 または 9 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項11] 前記発光層を塗布する溶媒の双極子モーメントが1 デバイ以上であることを特徴とする請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項12] 白色に発光することを特徴とする請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項13] 請求項 1 ~ 12 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。
- [請求項14] 請求項 1 ~ 12 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

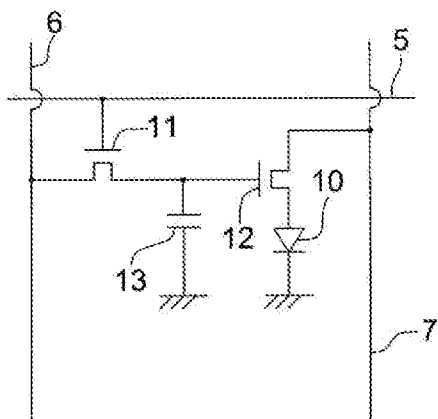
[図1]



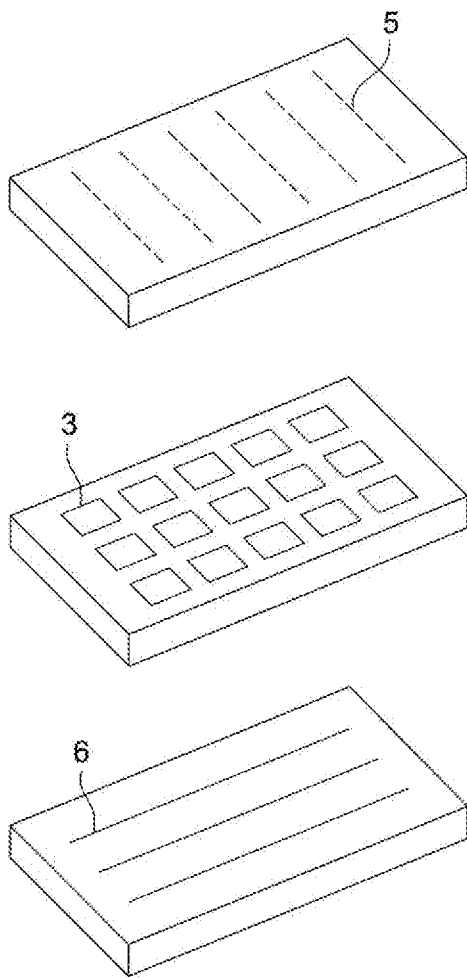
[図2]



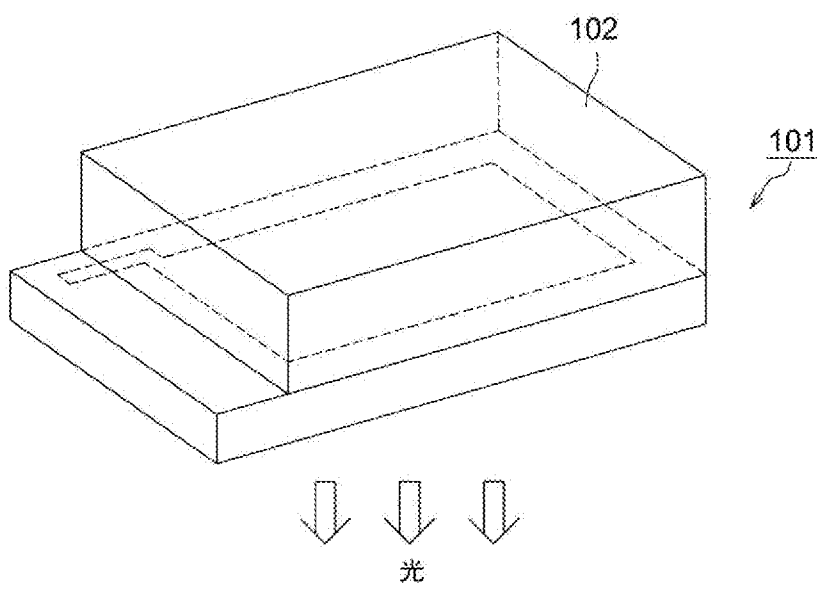
[図3]



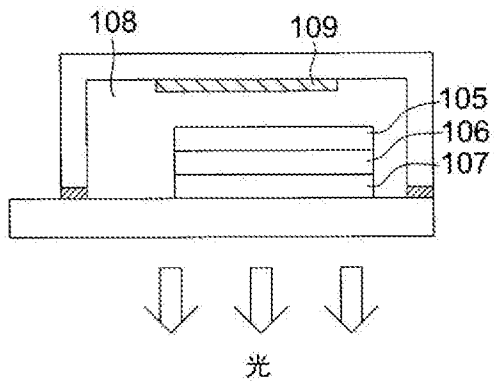
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/071120

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L51/50 (2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-288988 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 10 October 2003 (10.10.2003), paragraphs [0056] to [0093] (Family: none)	1-14
A	JP 2008-53557 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 06 March 2008 (06.03.2008), entire text; all drawings (Family: none)	1-14

 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

"I" 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
15 March, 2010 (15.03.10)Date of mailing of the international search report
23 March, 2010 (23.03.10)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/071120

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2008-311607 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 25 December 2008 (25.12.2008), paragraphs [0115] to [0130], [0164], [0165], [0276] to [0319] & WO 2008/140069 A1 & WO 2008/140114 A1 & WO 2008/140115 A1 & WO 2008/142976 A1 & WO 2008/143059 A1	1-14
A	WO 2007/095118 A2 (UNIVERSAL DISPLAY CORP.), 23 August 2007 (23.08.2007), entire text; all drawings & JP 2009-526071 A & US 2007/0190359 A1 & EP 1981898 A & KR 10-2008-0098489 A & CN 101415718 A	1-14

<Subject of search>

Claim 1 include great many combinations of the light-emitting dopant and the host compound which are defined by a desired property "the absolute value of the difference between the bipolar moment of the light-emitting dopant and the bipolar moment of the host compound is 2 debyes or less". Claim 1 includes all of the combinations of the light-emitting dopant and the host compound having the property. However, those combinations which are disclosed in the description in the meaning within PCT Article 5 are limited to just some of the claimed combinations of the light-emitting dopant and the host compound. Therefore, claim 1 is not supported in the meaning within PCT Article 6.

Such being the case, the search was made on the combinations of the light-emitting dopant and the host compound which are specifically mentioned in the description as working examples.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. 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	1971-2010年
日本国実用新案登録公報	1996-2010年
日本国登録実用新案公報	1994-2010年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2003-288988 A (松下電器産業株式会社) 2003.10.10, 【0056】 - 【0093】 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 2008-53557 A (松下電工株式会社) 2008.03.06, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-14

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、一般的な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

15.03.2010

国際調査報告の発送日

23.03.2010

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 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)

本田 博幸

20

2905

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2008-311607 A (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2008. 12. 25, 【0115】 - 【0130】, 【0164】, 【0165】, 【0276】 - 【0319】 & WO 2008/140069 A1 & WO 2008/140114 A1 & WO 2008/140115 A1 & WO 2008/142976 A1 & WO 2008/143059 A1	1-14
A	WO 2007/095118 A2 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION) 2007. 08. 23, 全文, 全図 & JP 2009-526071 A & US 2007/0190359 A1 & EP 1981898 A & KR 10-2008-0098489 A & CN 101415718 A	1-14

<調査の対象について>

請求項1は、「発光ドーパントとホスト化合物の双極子モーメントの差の絶対値が2デバイ以下」という所望の性質により定義された、非常に多数の発光ドーパントとホスト化合物の組み合わせを包含する。そして、請求項1は、そのような性質を有するあらゆる発光ドーパントとホスト化合物の組み合わせを包含するものであるが、PCT第5条の意味において明細書に開示されているのは、クレームされた発光ドーパントとホスト化合物の組み合わせのごくわずかな部分にすぎず、PCT第6条の意味での裏付けを欠いている。

よって、調査は、明細書に実施例として具体的に記載されている発光ドーパントとホスト化合物の組み合わせについて行った。