

(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
2014 年 6 月 26 日(26.06.2014)



(10) 国際公開番号
WO 2014/098014 A1

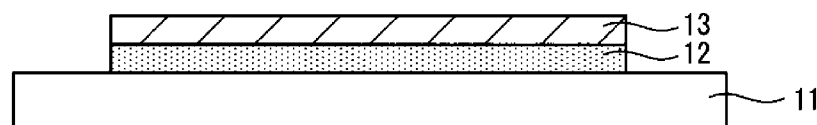
- (51) 国際特許分類:
H05B 33/28 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
H01B 5/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/083582
- (22) 国際出願日: 2013 年 12 月 16 日(16.12.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2012-275926 2012 年 12 月 18 日(18.12.2012) JP
- (71) 出願人: コニカミノルタ株式会社(KONICA MINOLTA, INC.) [JP/JP]; 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 木下 敏幸(KINOSHITA Toshiyuki); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 波木井 健(HAKII Takeshi); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 石代 宏(ISHIDAI Hiroshi); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 吉田 和央(YOSHIDA Kazuhiro); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人信友国際特許事務所(SHIN-YU INTERNATIONAL PATENT FIRM); 〒1510073 東京都渋谷区笹塚 2-1-6 笹塚センタービル Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロパ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: TRANSPARENT ELECTRODE AND ELECTRONIC DEVICE

(54) 発明の名称: 透明電極、及び、電子デバイス

FIG. 1

10



(57) Abstract: A transparent electrode is provided with a AgAl layer comprising 50 at% or less of aluminum and a conductive layer that comprises silver as a main component thereof and that is arranged adjacent to the AgAl layer.

(57) 要約: アルミニウムを 50 at% 以下含む AgAl 層と、AgAl 層に隣接して設けられた銀を主成分とする導電層とを備える透明電極を構成する。



WO 2014/098014 A1

明 細 書

発明の名称：透明電極、及び、電子デバイス

技術分野

[0001] 本発明は、透明電極、及び、この透明電極を備える電子デバイスに関する。

背景技術

[0002] 有機材料のエレクトロルミネッセンス（electroluminescence：以下ＥＬと記す）を利用した有機電界発光素子（いわゆる有機ＥＬ素子）は、数Ｖ～数十Ｖ程度の低電圧で発光が可能な薄膜型の完全固体素子であり、高輝度、高発光効率、薄型、軽量といった多くの優れた特徴を有する。このため、各種ディスプレイのバックライト、看板や非常灯等の表示板、照明光源等の面発光体として近年注目されている。

[0003] このような有機電界発光素子は、２枚の電極間に有機材料を用いて構成された発光層を挟持した構成であり、発光層で生じた発光光は電極を透過して外部に取り出される。このため、２枚の電極のうちの少なくとも一方は透明電極として構成される。

[0004] 透明電極としては、酸化インジウムスズ（Indium Tin Oxide：ＩＴＯ）等の酸化物半導体系の材料が一般的に用いられているが、ＩＴＯと銀とを積層して低抵抗化を狙った検討もなされている（例えば、下記特許文献１、特許文献２参照）。しかしながら、ＩＴＯはレアメタルのインジウムを使用しているため、材料コストが高く、また抵抗を下げるために成膜後に３００℃程度でアニール処理する必要がある。そこで、電気伝導率の高い銀等の金属材料を薄膜化した構成や、銀にアルミニウムを混ぜることにより銀単独よりも薄い膜厚で導電性を確保する構成も提案されている（例えば、下記特許文献３参照）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2002-15623号公報

特許文献2：特開2006-164961号公報

特許文献3：特開2009-151963号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、電気伝導率の高い銀やアルミニウムを用いて構成された透明電極であっても、十分な導電性と光透過性との両立を図ることは困難であった。

[0007] そこで本発明は、十分な導電性と光透過性とを兼ね備えた透明電極を提供すること、およびこの透明電極を用いることによって性能の向上が図られた電子デバイスを提供する。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明の透明電極は、アルミニウムを50atm%以下含むAgAl層と、AgAl層に隣接して設けられた銀を主成分とする導電層とを備える。

また、本発明の電子デバイスは、上記透明電極を備える。

[0009] 本発明の透明電極によれば、アルミニウムを50atm%以下含むAgAl層に隣接させて、銀を主成分とした導電層が設けられる。このAgAl層上に銀を主成分とする導電層を形成することにより、銀原子とAgAl層を構成する化合物との相互作用を得ることができ、銀の凝集が抑えられ、薄いながらも均一な厚さの導電層が得られる。

従って、銀を用いた透明電極において、導電性の向上と光透過性の向上との両立が可能となる。また、この透明電極を用いて、導電性と光透過性との優れる電子デバイスを構成することができる。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、導電性と光透過性との優れた透明電極、及び、電子デバイスを提供することができる。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]第1実施形態の透明電極の概略構成を示す図である。

[図2]第2実施形態の透明電極の概略構成を示す図である。

[図3]第3実施形態の有機電界発光素子の概略構成を示す図である。

[図4]第4実施形態の有機電界発光素子の概略構成を示す図である。

[図5]第5実施形態の有機電界発光素子の概略構成を示す図である。

[図6]第6実施形態の有機電界発光素子の概略構成を示す図である。

[図7]実施例2で作製したボトムエミッション型の有機電界発光素子の概略構成を示す図である。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明を実施するための最良の形態の例を説明するが、本発明は以下の例に限定されるものではない。

なお、説明は以下の順序で行う。

1. 透明電極（第1実施形態）
2. 透明電極（第2実施形態）
3. 有機電界発光素子（第3実施形態：ボトムエミッション型）
4. 有機電界発光素子（第4実施形態：トップエミッション型）
5. 有機電界発光素子（第5実施形態：両面発光型）
6. 有機電界発光素子（第6実施形態：逆積み構成）
7. 照明装置（第7実施形態）

[0013] 〈1. 透明電極（第1実施形態）〉

本発明の第1実施形態について説明する。図1に、第1実施形態の透明電極の概略構成図（断面図）を示す。図1に示すように、透明電極10は、AgAl層12と、導電層13とを備えて、基材11上に形成されている。透明電極10は、AgAl層12の一方面上に隣接して導電層13が形成され、AgAl層12の他方面側に基材11を備える。

[0014] 以下に、本例の透明電極10について、基材11、AgAl層12、及び導電層13の順に、詳細な構成を説明する。なお、本例の透明電極10において、透明とは波長550nmでの光透過率が50%以上であることをいう

。

[0015] [基材 1 1]

透明電極 1 0 が形成される基材 1 1 は、例えばガラス、プラスチック等を挙げることができるが、これらに限定されない。また、基材 1 1 は透明であっても不透明であってもよい。透明電極 1 0 が、基材 1 1 側から光を取り出す電子デバイスに用いられる場合には、基材 1 1 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基材 1 1 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。また、透明電極 1 0 が、基材 1 1 とは反対側から光を取り出す電子デバイスに用いられる場合には、基材 1 1 は透明であっても、不透明であってもよい。

[0016] ガラスとしては、例えば、シリカガラス、ソーダ石灰シリカガラス、鉛ガラス、ホウケイ酸塩ガラス、無アルカリガラス等が挙げられる。これらのガラス材料の表面には、透明電極 1 0 の積層構造との密着性、耐久性、平滑性の観点から、必要に応じて研磨等の物理的処理や、無機物又は有機物からなる被膜、これらの被膜を組み合わせたハイブリッド被膜が形成される。

[0017] 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（TAC）、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）、セルロースアセテートフタレート、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類又はそれらの誘導体、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、アートン（商品名 JSR 社製）又はアペル（商品名三井化学社製）といったシクロオ

レフィン系樹脂等が挙げられる。

[0018] 樹脂フィルムの表面には、無機物又は有機物からなる被膜や、これらの被膜を組み合わせたハイブリッド被膜が形成されていてもよい。このような被膜及びハイブリッド被膜は、J I S - K - 7 1 2 9 - 1 9 9 2 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 $90 \pm 2\% \text{RH}$) が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下のバリア性フィルム（バリア膜等ともいう）であることが好ましい。またさらには、J I S - K - 7 1 2 6 - 1 9 8 7 に準拠した方法で測定された酸素透過度が $10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

[0019] 以上のようなバリア性フィルムを形成する材料としては、樹脂フィルムの劣化をもたらす水分や酸素等素子の浸入を抑制する機能を有する材料を用いる。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。さらに当該バリア性フィルム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（有機層）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。

[0020] バリア性フィルム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。特に、特開2004-68143号公報に記載の大気圧プラズマ重合法を好ましく用いることができる。

[0021] 一方、基材11が不透明なものである場合、例えば、アルミニウム、ステンレス等の金属基板、不透明樹脂基板、セラミック製の基板等を用いることができる。これらの基板は、フレキシブルに屈曲するフィルム状であってもよい。

[0022] [A g A l 層]

A g A l 層 1 2 は、銀 (A g) とアルミニウム (A l) とを含み、A l を 5 0 a t m % 以下含んで構成されている。A g A l 層 1 2 は、導電層 1 3 に隣接して形成された層である。導電層 1 3 と接し A g A l 層 1 2 が形成されることにより、導電層 1 3 の主成分である銀と、A g A l 層 1 2 を構成する A l との相互作用により、A g A l 層 1 2 表面における銀原子の拡散距離が減少し、銀の凝集が抑えられる。このため、一般的に、核成長型 (Volumer-W eber : V W 型) での成長により島状に孤立し易い薄銀層が、単層成長型 (F r a n k - v a n d e r M e r w e : F M 型) の成長によって形成される。従って、A g A l 層 1 2 に接して、銀を主成分とする導電層 1 3 を形成することにより、薄いながらも、均一な厚さの導電層 1 3 が得られる。

[0023] A g A l 層 1 2 は、A l の含有量が 5 0 a t m % を超えると、A l の含有量が多くなりすぎ、平坦性や均一性が低下する。A l は酸化しやすいため、A l の含有量が大きくなると、A l の酸化による影響が A g A l 層 1 2 に支配的になる。具体的には、A l が酸化すると、A l 酸化物の成長により、さらに A l 酸化物の凝集が発生し、A g A l 層 1 2 に突起部や孔部が発生する。このため、A g A l 層 1 2 の膜均一性が低下し、光散乱等が顕著になる。従って、A l の含有量が大きくなると、A l の酸化に起因する A g A l 層 1 2 の形状変化による光学的な影響が支配的になり、A g A l 層 1 2 の光学特性、特に光の透過性及び視認性が低下する。

[0024] このため、A l の含有量は 5 0 a t m % 以下とすることが好ましい。また、A l の含有量は、A g を主成分とする導電層 1 3 の凝集抑制効果を発揮できる範囲において、少ない方が好ましい。例えば、A l の含有量を 0 . 5 a t m % 以上とすることが好ましい。

[0025] A g A l 層 1 2 としては、A l と A g 以外の金属が添加されていてもよい。これらの金属としては、例えば、マグネシウム (M g) 、銅 (C u) 、インジウム (I n) 、イリジウム (I r) 、金 (A u) 、リチウム (L i) 等が添加されていてもよい。

[0026] また、A g A l 層 1 2 は、透明電極 1 0 の光透過性を阻害しない程度の厚

さとし、例えば5 nm以下とすることが好ましい。また、AgAl層12の厚さが大きいほど、導電層13の性質が向上し、透明電極10の導電性がよくなる。このため、AgAl層12は、透明電極10の導電性を確保できる程度の厚さが必要であり、例えばAgAl層12が0.5 nm程度の厚さを有し、さらに連続膜であることが好ましい。

[0027] なお、このようなAgAl層12の形成方法は特に限定されないが、例えば、蒸着法（EB、抵抗加熱）、及びスパッタ法を好ましく使用できる。

[0028] [導電層]

導電層13は、銀を主成分として構成された層であって、銀又は銀を主成分とした合金を用いて構成され、AgAl層12に隣接して形成された層である。このような導電層13の形成方法としては、塗布法、インクジェット法、コーティング法、ディップ法等のウェットプロセスを用いる方法や、蒸着法（抵抗加熱、EB法等）、スパッタ法、CVD法等のドライプロセスを用いる方法等が挙げられる。なかでも蒸着法が好ましく適用される。また、導電層13は、AgAl層12上に形成されることにより、形成後の高温アニール処理等がなくても十分に導電性を有することを特徴とするが、必要に応じて、形成後に高温アニール処理等を行ったものであってもよい。

[0029] 導電層13を構成する銀（Ag）を主成分とする合金は、一例として銀マグネシウム（AgMg）、銀銅（AgCu）、銀パラジウム（AgPd）、銀パラジウム銅（AgPdCu）、銀インジウム（AgIn）等が挙げられる。

[0030] 以上のような導電層13は、銀又は銀を主成分とした合金の層が、必要に応じて複数の層に分けて積層された構成であってもよい。

[0031] さらに、透明電極10の光透過性を阻害しないために、導電層13とAgAl層12との合計の厚さが、15 nm以下となるように導電層13の厚さを設定することが好ましく、特に合計の厚さを12 nm以下とすることが好ましい。導電層13とAgAl層12との合計の厚さが15 nm以下では、層の吸収成分及び反射成分が低く抑えられ、透明電極10の光透過率が維持

されるため好ましい。さらに、導電層 13 と AgAl 層 12 との合計の厚さを 12 nm 以下とすることにより、透明電極 10 の光透過性がさらに向上する。また、導電層 13 は、少なくとも厚さが 3 nm 以上あれば、透明電極 10 の導電性が確保される。

[0032] なお、以上のような、AgAl 層 12、及び AgAl 層 12 に隣接して設けられた導電層 13 とからなる積層構造の透明電極 10 は、導電層 13 の上部が保護膜で覆われていてもよく、別の導電性層が積層されていてもよい。この場合、透明電極 10 の光透過性を損なうことのないように、保護膜及び導電性層が光透過性を有することが好ましい。

[0033] [透明電極の効果]

以上のように構成された透明電極 10 は、AgAl 層 12 に隣接させて、銀を主成分とした導電層 13 を設けた構成である。これにより、AgAl 層 12 に隣接させて導電層 13 を形成する際には、導電層 13 を構成する銀原子が AgAl 層 12 を構成する Al と相互作用し、銀原子の AgAl 層 12 表面での拡散距離が減少し、銀の凝集が抑えられる。このため、一般的には核成長型 (Volumer-Weber : VW 型) での成長により島状に孤立し易い薄銀層が、単層成長型 (Frank-van der Merwe : FM 型) の成長によって形成されるようになる。したがって、薄いながらも、均一な厚さの導電層 13 が得られるようになる。

[0034] 以上の結果、このような AgAl 層 12 の上部に、薄く均一な厚さを有することで光透過性を確保しつつ、導電性が確保された導電層 13 を得ることができる。このため、銀を用いた透明電極 10 において、導電性の向上と、光透過性の向上との両立を図ることが可能になる。

[0035] 〈2. 透明電極 (第 2 実施形態)〉

次に、本発明の第 2 実施形態について説明する。図 2 に、第 2 実施形態の透明電極の概略構成図 (断面図) を示す。図 2 に示すように、第 2 実施形態の透明電極 20 は、高屈折率層 24 を備えることのみが、図 1 に示す第 1 実施形態の透明電極 10 と異なる。以下、第 1 実施形態と同様の構成要素につ

いての重複する詳細な説明は省略し、第2実施形態の透明電極20の構成を説明する。

[0036] 図2に示すように、透明電極20は、高屈折率層24と、AgAl層12と、導電層13とを備え、基材11上に形成されている。AgAl層12及び導電層13は、上述の第1実施形態と同様の構成である。また、透明電極20は、高屈折率層24の一方面側にAgAl層12が形成され、他方面側に基材11を備えている。導電層13はAgAl層の一方面上に隣接して形成されている。

[0037] [高屈折率層]

高屈折率層24は、波長550nmにおける屈折率が2.0以上の層である。高屈折率層24は、導電層13との間にAgAl層12を挟持して設けられ、金属酸化物で構成された層である。このような高屈折率層24には金属酸化物が用いられ、例えば、二酸化チタン(TiO_2 : $n=2.3\sim2.4$)、酸化ジルコニウム(ZrO_2 : $n=2.4$)、酸化カドミウム(CdO : $n=2.49$)、酸化インジウムスズ(ITO : $n=2.1\sim2.2$)、酸化ハフニウム(HfO_2 : $n=2.1$)、五酸化タンタル(Ta_2O_5 : $n=2.16$)、酸化ニオブ(Nb_2O_5 : $n=2.2\sim2.4$)、酸化セリウム(CeO_2 : $n=2.2$)等の光学フィルムに一般的に用いられる高屈折率材料が用いられる。

[0038] [透明電極の効果]

透明電極20は、AgAl層12及び導電層13に加え、高屈折率層24を有する。このため、透明電極20は、上述の第1実施形態の透明電極の有する効果に加えて、銀を主成分とする導電層13で生じる反射が抑制され、透明電極20における光透過性がさらに向上する。

[0039] [透明電極の用途]

上述した第1実施形態及び第2実施形態の透明電極は、各種電子デバイスに用いることができる。電子デバイスの例としては、有機電界発光素子、LED (Light Emitting Diode)、液晶素子、太陽電池、タッチパネル等が挙

げられ、これらの電子デバイスにおいて光透過性を必要とされる電極部材として、上述の各実施形態の透明電極を用いることができる。

以下では、透明電極の用途の一例として、透明電極をアノード及びカソードとして用いた有機電界発光素子の実施の形態を説明する。

[0040] 〈3. 有機電界発光素子（第3実施形態：ボトムエミッション型）〉

次に、本発明の第3実施形態について説明する。第3実施形態は、電子デバイスの一例として、上述の第2実施形態の透明電極を用いたボトムエミッション型の有機電界発光素子について説明する。図3に、本実施形態の有機電界発光素子の断面構成図を示す。以下にこの図に基づいて有機電界発光素子の構成を説明する。

[0041] [有機電界発光素子の構成]

図3に示す有機電界発光素子30は、透明基板31上に設けられており、透明基板31側から順に、アノードとなる透明電極20、発光機能層32、及びカソードとなる対向電極33が積層されている。このうち、透明電極20として、上述の第2実施形態の透明電極20が用いられている。このため有機電界発光素子30は、発生させた光（以下、発光光hと記す）を、少なくとも透明基板31側から取り出すボトムエミッション型として構成されている。

[0042] また、有機電界発光素子30の全体的な層構造は、上記に限定されることなく、一般的な層構造であってもよい。ここでは、透明電極20がアノード（すなわち陽極）側に配置され、主に導電層13がアノードとして機能する一方、対向電極33がカソード（すなわち陰極）として機能する。

[0043] この場合、例えば発光機能層32は、アノードである透明電極20の上部に〔正孔注入層32a／正孔輸送層32b／発光層32c／電子輸送層32d／電子注入層32e〕をこの順に積層した構成を例示できるが、このうち少なくとも有機材料を用いて構成された発光層32cを有することが必要である。正孔注入層32a及び正孔輸送層32bは、正孔輸送性と正孔注入性とを有する正孔輸送／注入層として設けられてもよい。電子輸送層32d及

び電子注入層 32 e は、電子輸送性と電子注入性とを有する単一層として設けられてもよい。また、これらの発光機能層 32 のうち、例えば電子注入層 32 e は無機材料で構成されている場合もある。

[0044] また、発光機能層 32 は、これらの層の他にも正孔阻止層や電子阻止層等が必要に応じて必要箇所に積層されていてよい。さらに、発光層 32 c は、各波長領域の発光光を発生させる各色発光層を有し、これらの各色発光層を、非発光性の中間層を介して積層させて発光層ユニットとして形成されていてもよい。中間層は、正孔阻止層、電子阻止層として機能してもよい。さらにカソードである対向電極 33 も、必要に応じた積層構造であってもよい。このような構成において、透明電極 20 と対向電極 33 とで発光機能層 32 が挟持されている部分のみが、有機電界発光素子 30 における発光領域となる。

[0045] また、以上のような層構成においては、透明電極 20 の低抵抗化を図ることを目的とし、透明電極 20 の導電層 13 に接して補助電極が設けられていてもよい。

[0046] 以上のような構成の有機電界発光素子 30 は、有機材料等を用いて構成された発光機能層 32 の劣化を防止することを目的として、透明基板 31 上において後述する透明封止材で封止されている。この透明封止材は、接着剤を介して透明基板 31 側に固定されている。ただし、透明電極 20 及び対向電極 33 の端子部分は、透明基板 31 上において発光機能層 32 によって互いに絶縁性を保ちつつ、透明封止材から露出させた状態に配置される。

[0047] 以下、上述した有機電界発光素子 30 を構成するための主要各層の詳細を、透明基板 31、透明電極 20、対向電極 33、発光機能層 32 の発光層 32 c、発光機能層 32 の他の層、補助電極、及び封止材の順に説明する。その後、有機電界発光素子 30 の作製方法を説明する。

[0048] [透明基板]

透明基板 31 は、上述の図 1 に示す第 1 実施形態の透明電極 10 が設けられる基材のうち、光透過性を有する透明な材料が用いられる。

[0049] [透明電極（アノード側）]

透明電極 20 は、上述の実施形態の透明電極 20 であり、透明基板 31 側から順に、高屈折率層 24、AgAl 層 12、及び導電層 13 が順に形成された構成である。ここでは特に、透明電極 20 を構成する導電層 13 が実質的なアノードとなる。

[0050] [対向電極（カソード）]

対向電極 33 は、発光機能層 32 に電子を供給するためのカソードとして機能する導電層であり、金属、合金、有機又は無機の導電性化合物、及びこれらの混合物が用いられる。具体的には、金、アルミニウム、銀、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、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属、ITO、ZnO、TiO₂、SnO₂等の酸化物半導体等が挙げられる。

[0051] 対向電極 33 は、これらの導電性材料を蒸着やスパッタリング等の方法により薄層を形成させることにより作製することができる。また、対向電極 33 としてのシート抵抗は、数百 $\Omega/\text{sq.}$ 以下が好ましく、厚さは通常 5 nm $\sim$ 5 μm 、好ましくは 5 nm $\sim$ 200 nm の範囲で選ばれる。

[0052] [発光層]

本実施形態の有機電界発光素子に用いられる発光層 32c は、発光材料として例えば燐光発光化合物が含有されている。

[0053] この発光層 32c は、電極又は電子輸送層 32d から注入された電子と、正孔輸送層 32b から注入された正孔とが再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層 32c の層内であっても発光層 32c における隣接する層との界面であってもよい。

[0054] このような発光層 32c としては、含まれる発光材料が発光要件を満たしていれば、その構成には特に制限はない。また、同一の発光スペクトルや発光極大波長を有する層が複数層あってもよい。この場合、各発光層 32c 間には非発光性の中間層（図示せず）を有していることが好ましい。

[0055] 発光層 3 2 c の厚さの総和は 1 ~ 1 0 0 n m の範囲にあることが好ましく、さらに好ましくは、より低い電圧で駆動することができることから 1 ~ 3 0 n m である。尚、発光層 3 2 c の厚さの総和とは、発光層 3 2 c 間に非発光性の中間層が存在する場合には、当該中間層も含む厚さである。

[0056] 複数層を積層した構成の発光層 3 2 c の場合、個々の発光層の厚さとしては、1 ~ 5 0 n m の範囲に調整することが好ましく、1 ~ 2 0 n m の範囲に調整することがより好ましい。積層された複数の発光層が、青、緑、赤のそれぞれの発光色に対応する場合、青、緑、赤の各発光層の厚さの関係については、特に制限はない。

[0057] 以上のような発光層 3 2 c は、後述する発光材料やホスト化合物を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB 法、インクジェット法等の公知の薄膜形成方法により形成することができる。

[0058] また発光層 3 2 c は、複数の発光材料を混合してもよく、また燐光発光材料と蛍光発光材料（蛍光ドーパント、蛍光性化合物ともいう）を同一発光層 3 2 c 中に混合して用いてもよい。

[0059] 発光層 3 2 c の構成として、ホスト化合物（発光ホストともいう）、発光材料（発光ドーパント化合物、ゲスト材料ともいう）を含有し、発光材料より発光させることが好ましい。

[0060] （ホスト化合物）

発光層 3 2 c に含有されるホスト化合物としては、室温（25℃）における燐光発光の燐光量子収率が 0.1 未満の化合物が好ましい。さらに、燐光量子収率が 0.01 未満である化合物が好ましい。また、ホスト化合物は、発光層 3 2 c に含有される化合物の中で、層中での体積比が 50% 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、又は複数種用いてもよい。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、有機電界発光素子 3 0 を高効率化することができる。また、後述する発光材料を複数種用いることで、異なる発光を混ぜるこ

とが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。

[0062] 用いられるホスト化合物としては、従来公知の低分子化合物でも、繰り返し単位をもつ高分子化合物でもよく、ビニル基やエポキシ基のような重合性基を有する低分子化合物（蒸着重合性発光ホスト）でもよい。

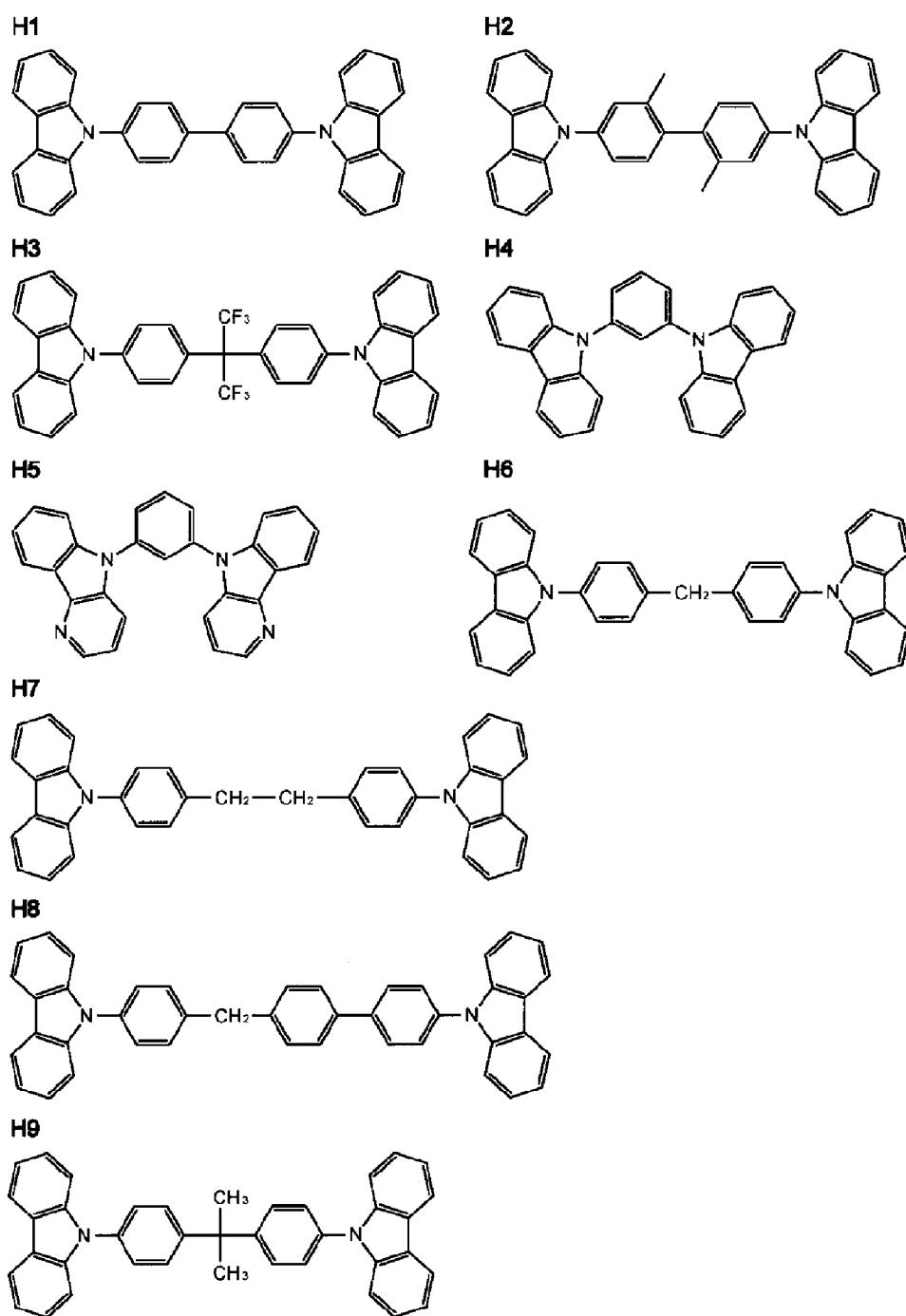
[0063] 公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、発光の長波長化を防ぎ、かつ高 T_g （ガラス転移温度）化合物が好ましい。ここでいうガラス転移点（ T_g ）とは、DSC（Differential Scanning Colorimetry：示差走査熱量法）を用いて、JIS-K-7121に準拠した方法により求められる値である。

[0064] 以下に、有機電界発光素子に適用可能なホスト化合物の具体例（H1～H79）を示す。なお、有機電界発光素子に適用可能なホスト化合物は、これらに限定されない。

ホスト化合物H68～H79において、 x 及び y はランダム共重合体の比率を表す。その比率は、例えば、 $x:y=1:10$ などとすることができる。

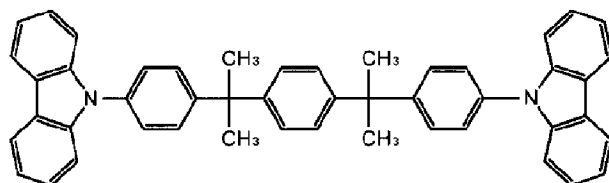
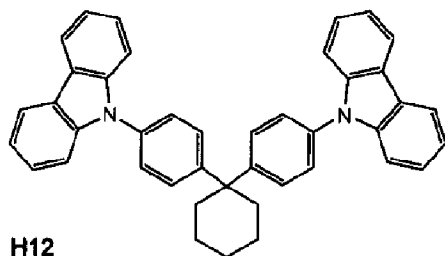
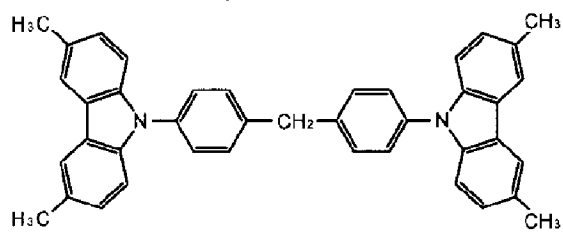
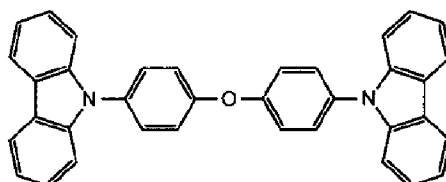
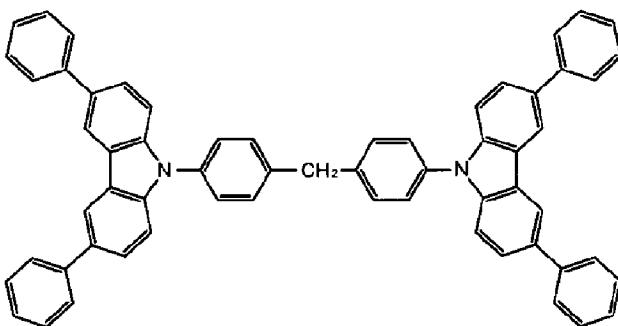
[0065]

[化1]



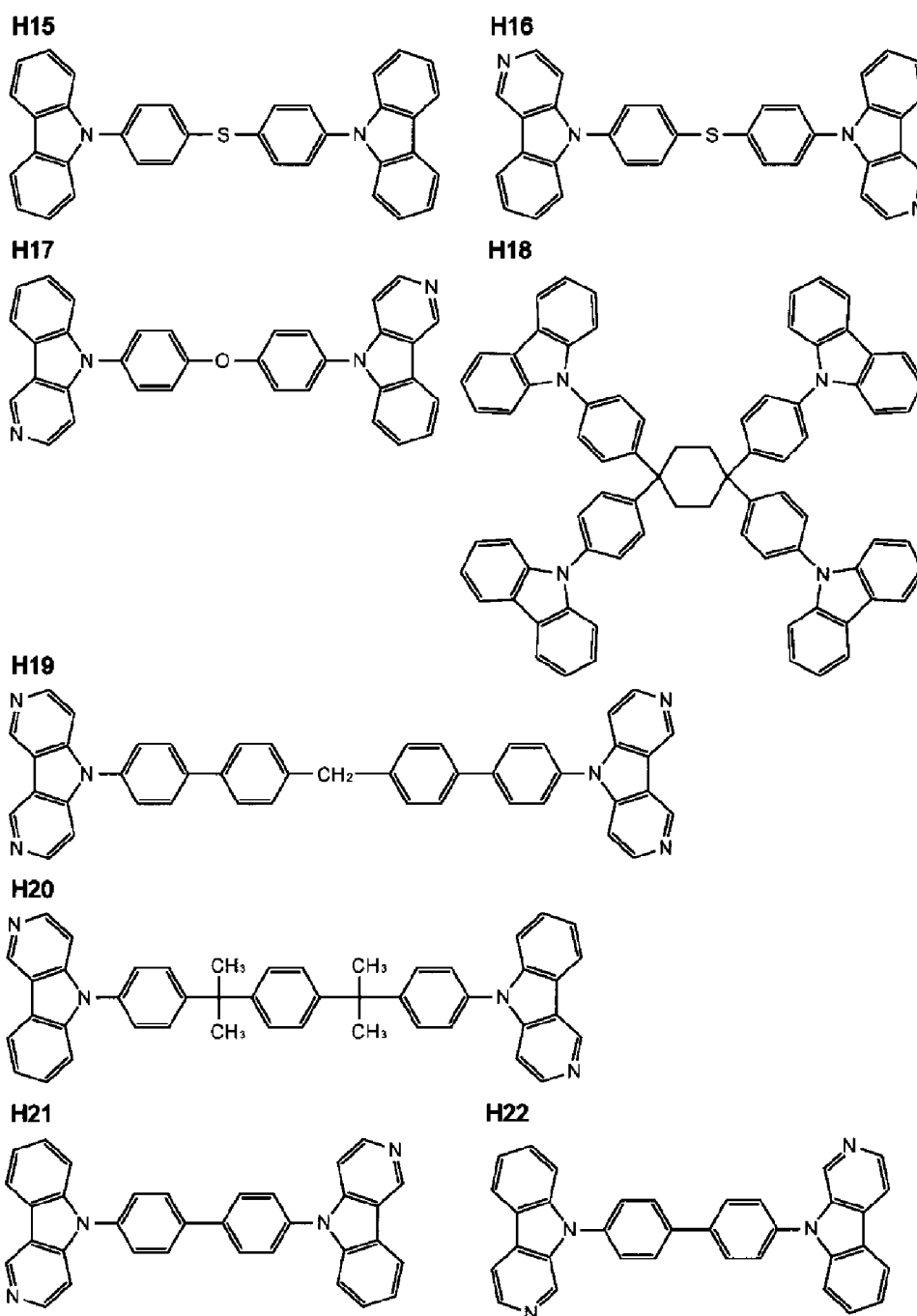
[0066]

[化2]

H10**H11****H12****H13****H14**

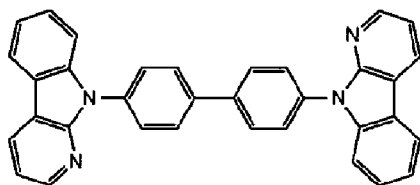
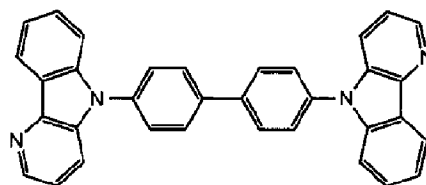
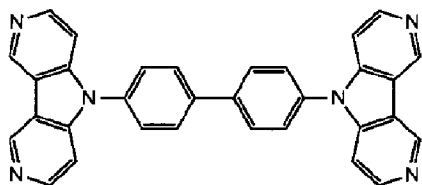
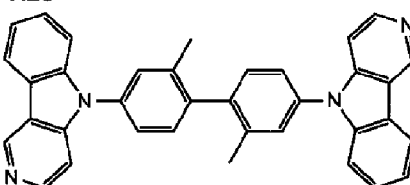
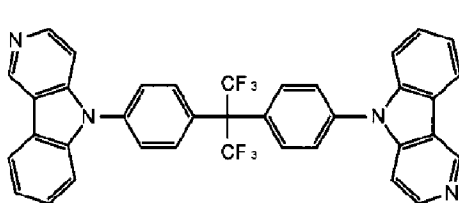
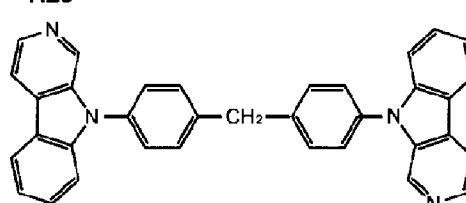
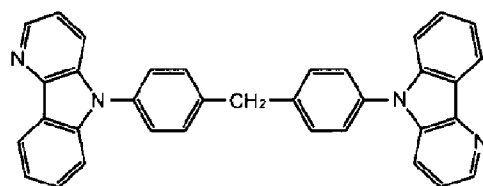
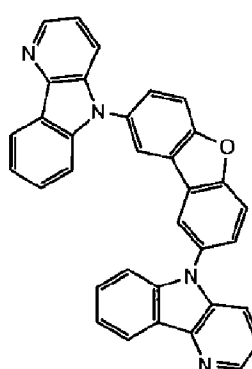
[0067]

[化3]



[0068]

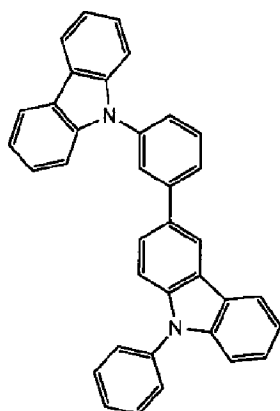
[化4]

H23**H24****H25****H26****H27****H28****H29****H30**

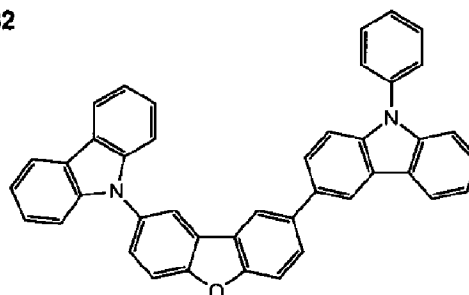
[0069]

[化5]

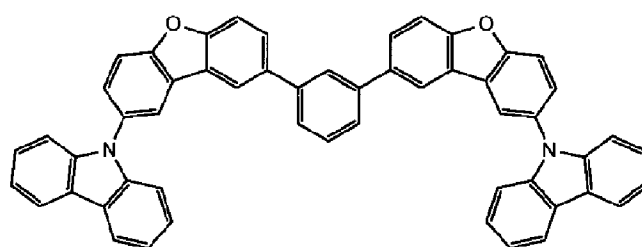
H31



H32

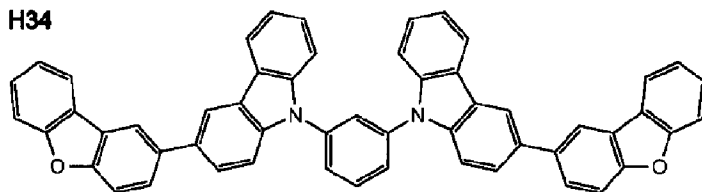
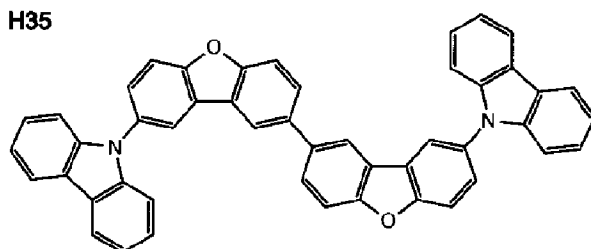
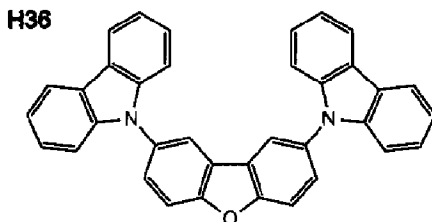
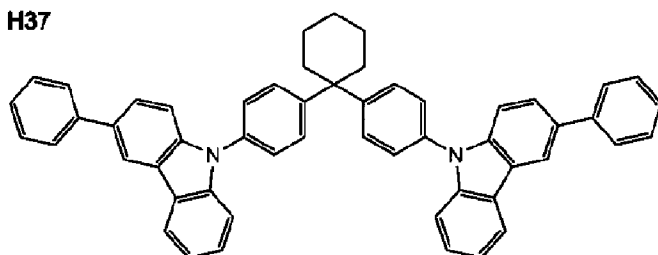
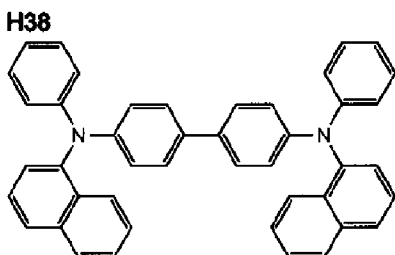
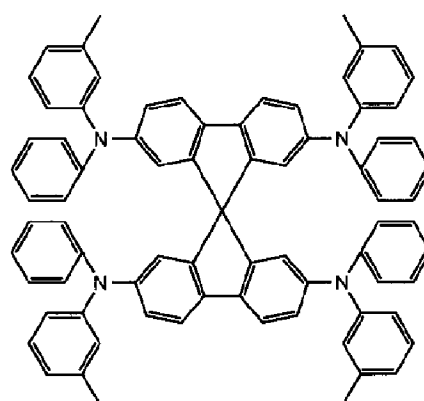


H33



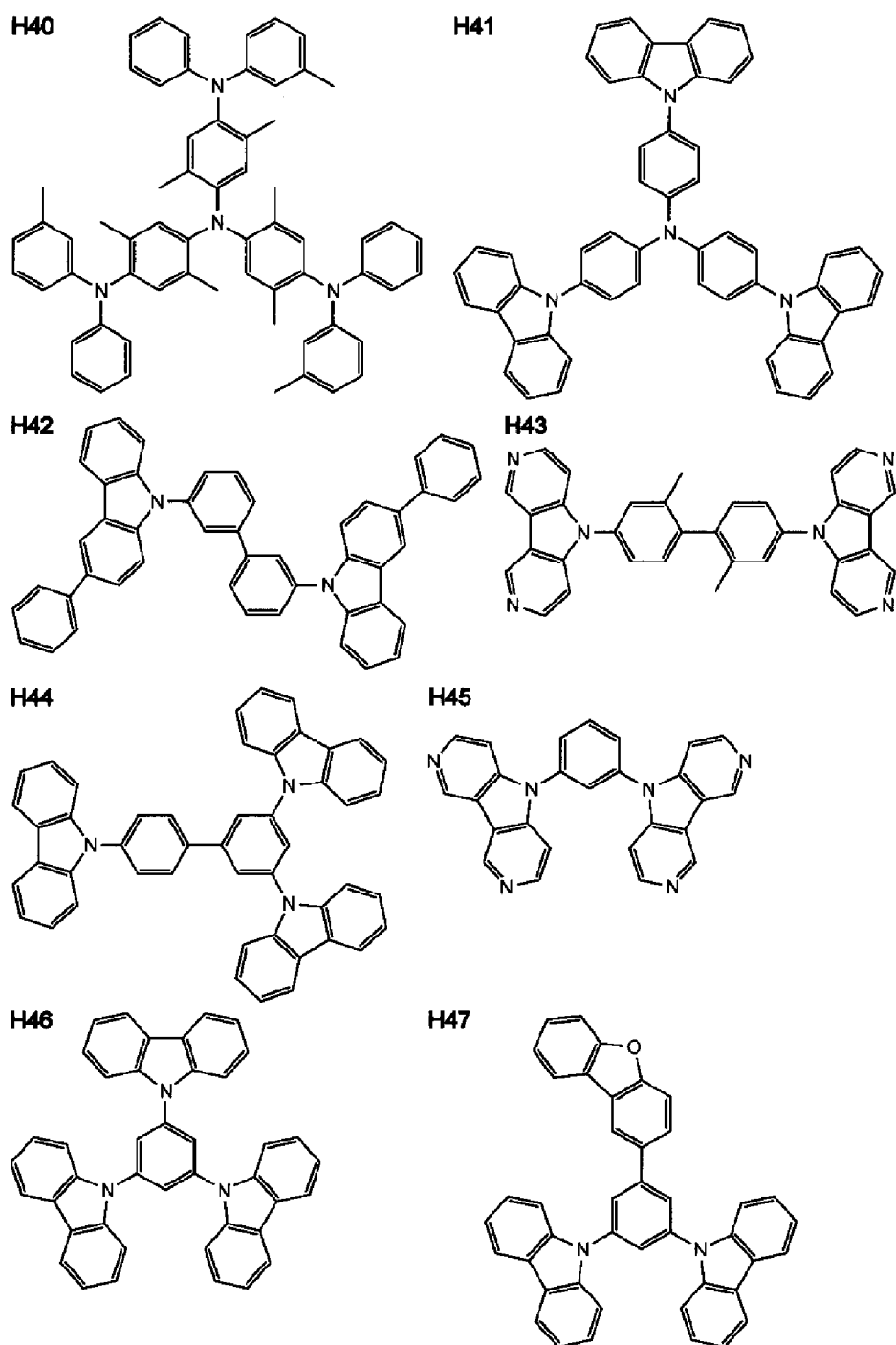
[0070]

[化6]

H34**H35****H36****H37****H38****H39**

[0071]

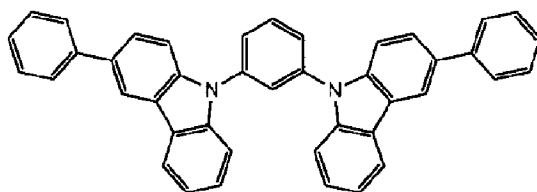
[化7]



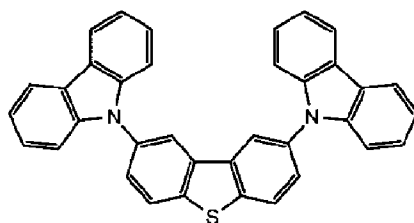
[0072]

[化8]

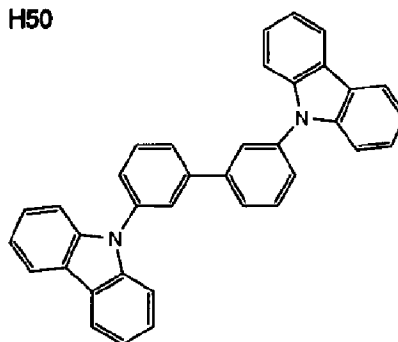
H48



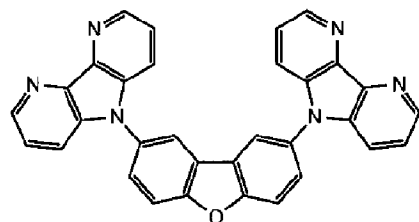
H49



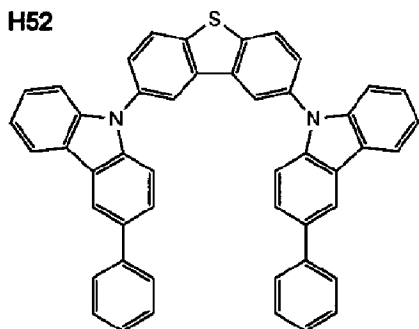
H50



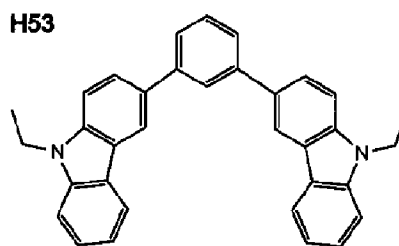
H51



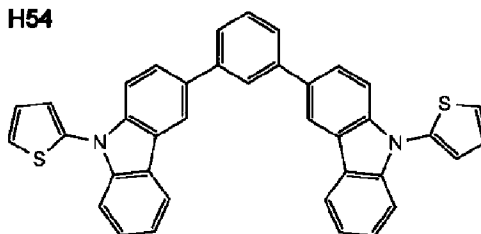
H52



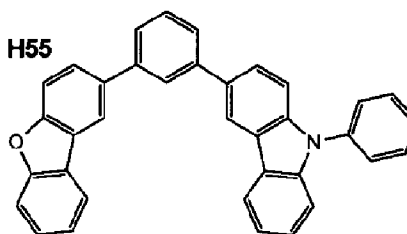
H53



H54



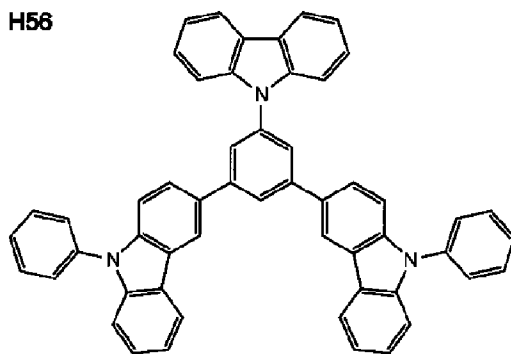
H55



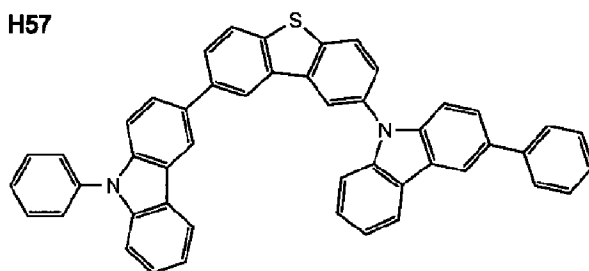
[0073]

[化9]

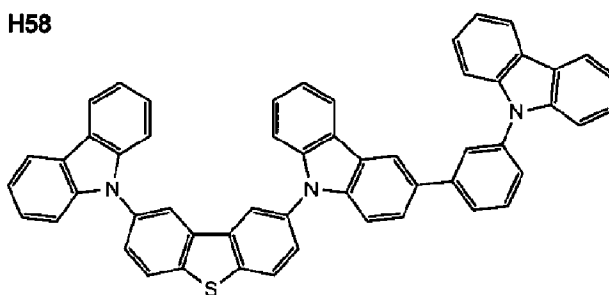
H56



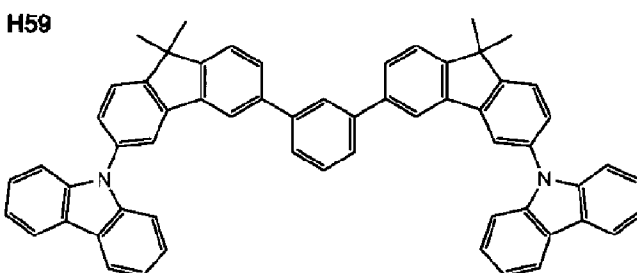
H57



H58

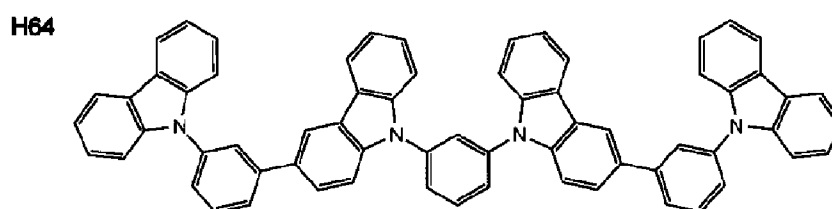
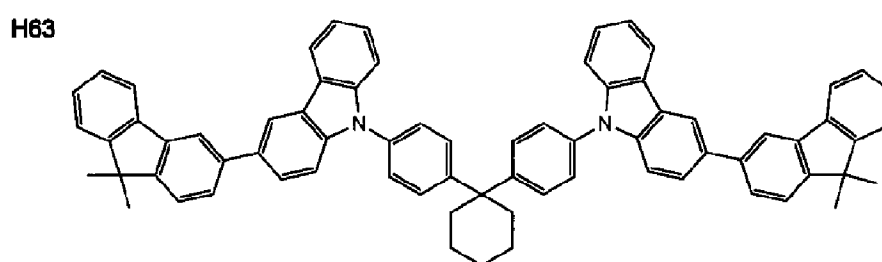
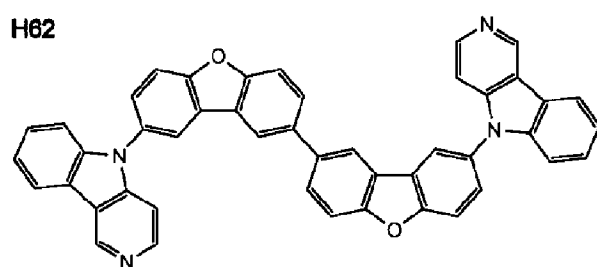
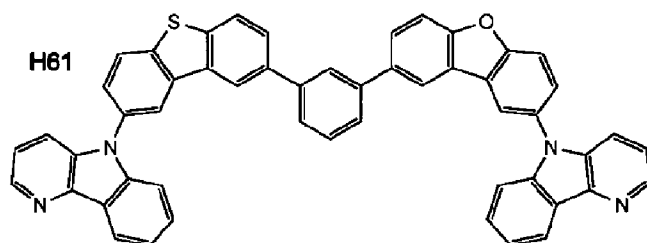
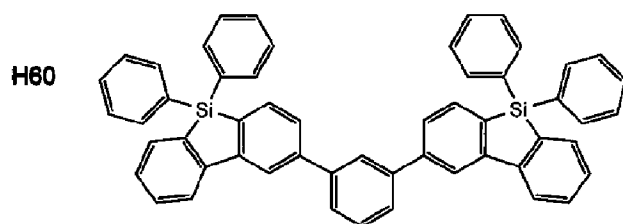


H59



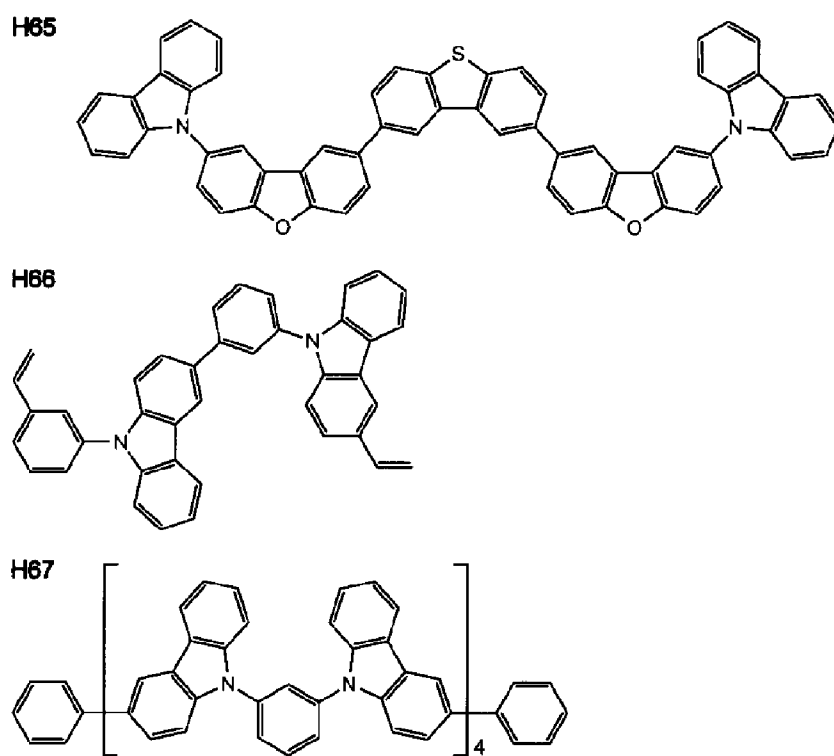
[0074]

[化10]



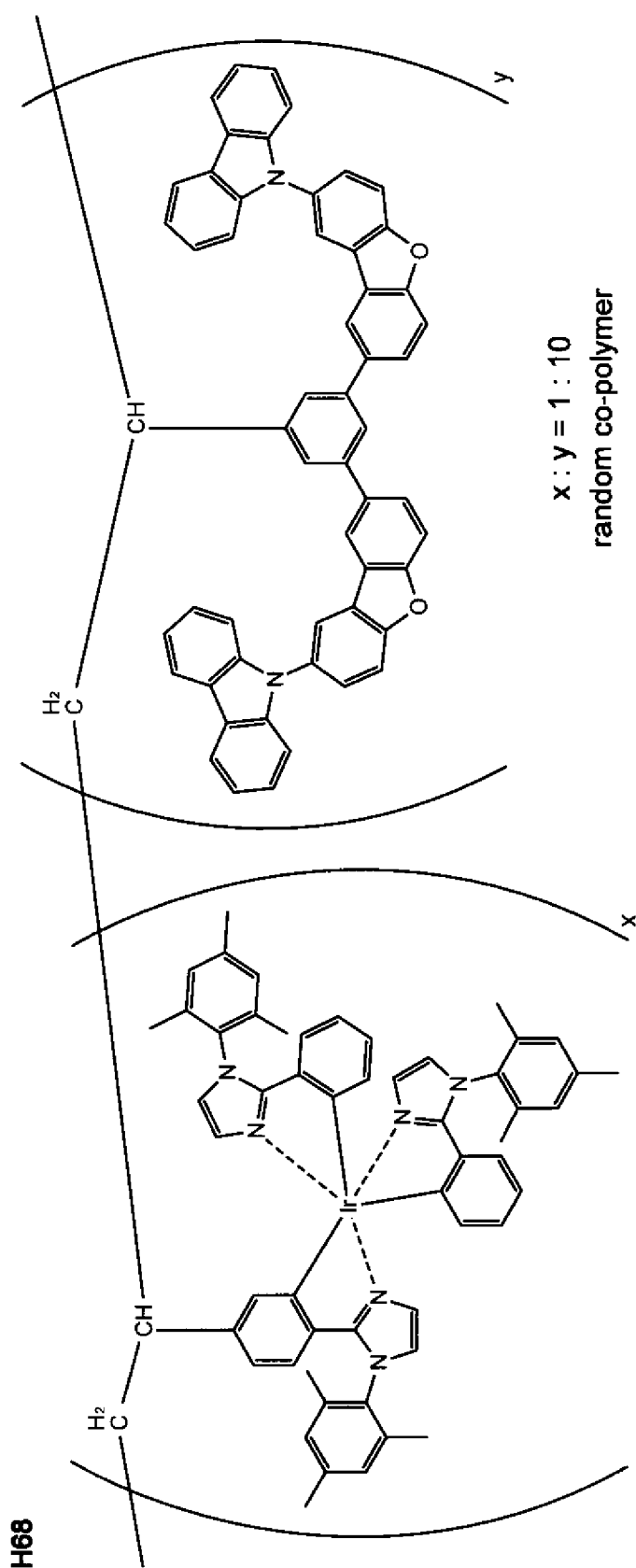
[0075]

[化11]

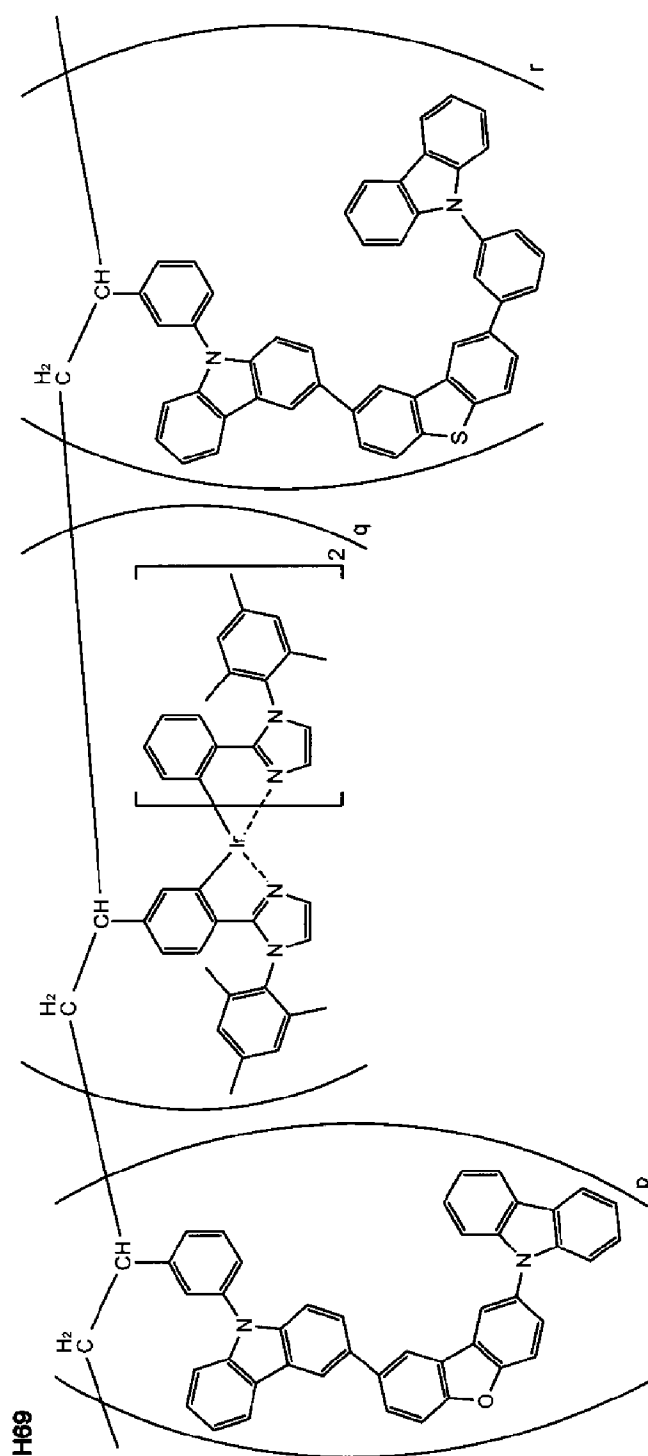


[0076]

[化12]

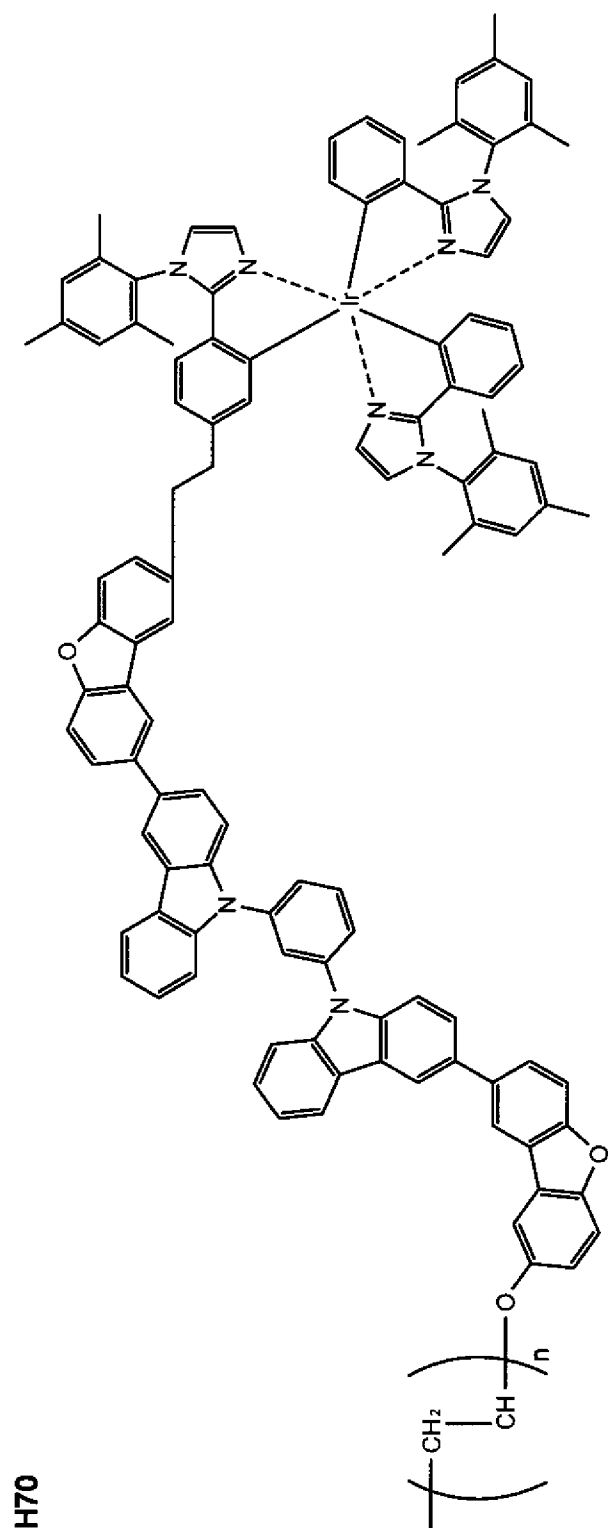


[0077] [化13]



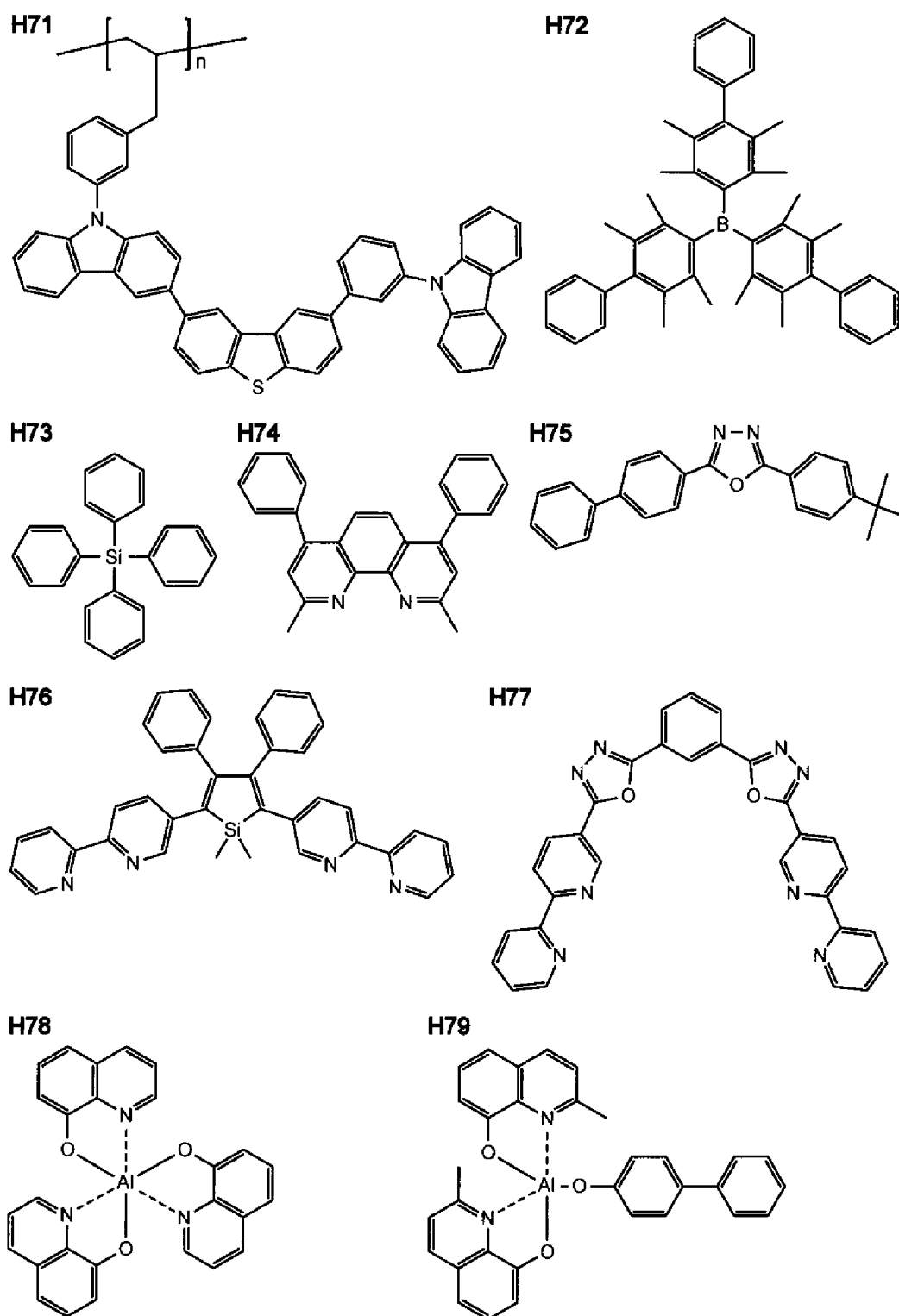
[0078]

[化14]



[0079]

[化15]



[0080] 公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合

物を用いることもできる。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号公報等が挙げられる。

[0081] (発光材料)

本実施形態の有機電界発光素子に用いることのできる発光材料としては、燐光発光性化合物（燐光性化合物、燐光発光材料ともいう）が挙げられる。

[0082] 燐光発光性化合物とは、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、具体的には室温（25℃）にて燐光発光する化合物であり、燐光量子収率が25℃において0.01以上の化合物であると定義されるが、好ましい燐光量子収率は0.1以上である。

[0083] 上記燐光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光ⅠⅠの398頁（1992年版、丸善）に記載の方法により測定できる。溶液中での燐光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本例において燐光発光性化合物を用いる場合、任意の溶媒のいずれかにおいて上記燐光量子収率（0.01以上）が達成できればよい。

[0084] 燐光発光性化合物の発光の原理としては2種挙げられる。一つは、キャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーを燐光発光性化合物に移動させることで燐光発光性化合物からの発光を得るというエネルギー移動型であり、もう一つは、燐光発光性化合物がキャリアトラップとなり、燐光発光性化合物上でキャリアの再結合が起こり燐光発光性化合物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。いずれの場合においても、燐光発光性化合物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となる。

[0085] 燐光発光性化合物は、一般的な有機電界発光素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができるが、好ましくは元素の周期表で8～10族の金属を含有する錯体系化合物である。さらに好ましくはイリジウム化合物、オスミウム化合物、又は白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

[0086] 本実施形態の有機電界発光素子においては、少なくとも一つの発光層32cに2種以上の燐光発光性化合物を含有していてもよく、発光層32cにおける燐光発光性化合物の濃度比が発光層32cの厚さ方向で変化していてもよい。

[0087] 燐光発光性化合物は好ましくは発光層32cの総量に対し0.1体積%以上30体積%未満である。

[0088] （一般式（1）で表される化合物）

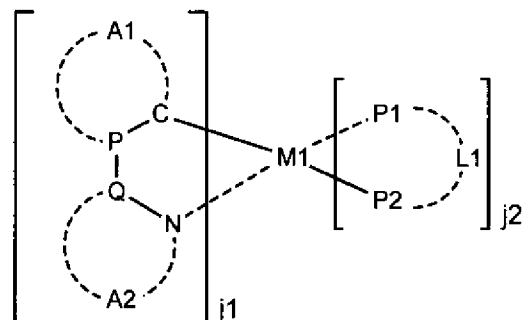
発光層32cに含まれる化合物（燐光発光性化合物）は、下記一般式（1）で表される化合物であることが好ましい。

[0089] なお、一般式（1）で表される燐光発光性化合物（燐光発光性の金属錯体ともいう）は、有機電界発光素子30の発光層32cに発光ドーパントとして含有されることが好ましい態様であるが、発光層32c以外の発光機能層に含有されていてもよい。

[0090]

[化16]

一般式(1)



[0091] 上記一般式(1)中、P、Qは、各々炭素原子又は窒素原子を表し、A1はP-Cと共に芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を形成する原子群を表す。A2はQ-Nと共に芳香族複素環を形成する原子群を表す。P1-L1-P2は2座の配位子を表し、P1、P2は各々独立に炭素原子、窒素原子又は酸素原子を表す。L1はP1、P2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1～3の整数を表し、j2は0～2の整数を表すが、j1+j2は2又は3である。M1は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。

[0092] そして、一般式(1)において、A1が、P-Cと共に形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、アンスラアントレン環等が挙げられる。

これらの環はさらに、置換基を有してもよい。置換基の例としては、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリ

デシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、アリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基、プロパルギル基等)、芳香族炭化水素基(芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ビフェニリル基)、芳香族複素環基(例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基(カルボリニル基のカルボリン環を構成する任意の炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す)、フタラジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホルリル基、オキサゾリジル基等)、アルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等)、シクロアルコキシ基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシ

ルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等)、アシル基(例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等)、アシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等)、アミド基(例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等)、カルバモイル基(例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基、ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等)、スルフィニル基(例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロ

ヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリールスルホニル基又はヘテロアリールスルホニル基(例えば、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基、ピペリジル基(ピペリジニル基ともいう)、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジニル基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)、リン酸エステル基(例えば、ジヘキシルホスホリル基等)、亜リン酸エステル基(例えばジフェニルホスフィニル基等)、ホスホノ基等が挙げられる。

これらの置換基の一部は、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。

[0093] 一般式(1)において、A₁が、P-Cと共に形成す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、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、アザカルバゾール環等が挙げられる。

ここで、アザカルバゾール環とは、上記カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が1つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

これらの環はさらに、先に例示した置換基を有してもよい。

[0094] 一般式(1)において、A²が、Q-Nと共に形成する芳香族複素環としては、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、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、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

これらの環はさらに、先に例示した置換基を有してもよい。

[0095] P¹-L¹-P²で表される2座の配位子としては、フェニルピリジン、フェニルピラゾール、フェニルイミダゾール、フェニルトリアゾール、フェニルテトラゾール、ピラザボール、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。

[0096] 一般式(1)において、j₁は1～3の整数を表し、j₂は0～2の整数を表すが、j₁+j₂は2又は3を表す、中でも、j₂は0である場合が好ましい。

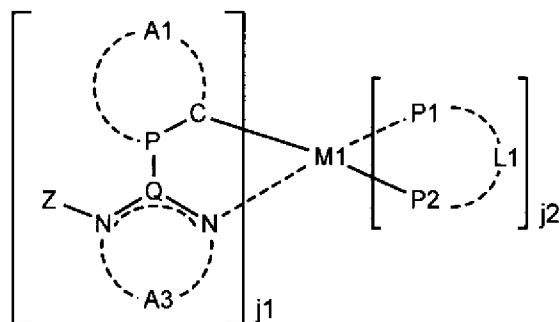
[0097] 一般式(1)において、M¹は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素(単に遷移金属ともいう)が用いられるが、中でも、イリジウム好ましい。

[0098] (一般式(2)で表される化合物)

一般式(1)で表される化合物の中でも、下記一般式(2)で表される化合物であることがさらに好ましい。

[0099] [化17]

一般式(2)



[0100] 上記一般式(2)中、Zは、炭化水素環基又は複素環基を表す。P、Qは、各々炭素原子又は窒素原子を表し、A1はP-Cと共に芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を形成する原子群を表す。A3は $-C(R01)=C(R02)-$ 、 $-N=C(R02)-$ 、 $-C(R01)=N-$ 又は $-N=N-$ を表し、R01、R02は、各々水素原子又は置換基を表す。P1-L1-P2は2座の配位子を表し、P1、P2は各々独立に炭素原子、窒素原子、又は酸素原子を表す。L1はP1、P2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1~3の整数を表し、j2は0~2の整数を表すが、j1+j2は2又は3である。M1は元素周期表における8族~10族の遷移金属元素を表す。

[0101] 一般式(2)において、Zで表される炭化水素環基としては、非芳香族炭化水素環基、芳香族炭化水素環基が挙げられ、非芳香族炭化水素環基としては、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。好ましくは、Zで表される基は、芳香族炭化水素環基又は芳香族複素環基である。

[0102] また、芳香族炭化水素環基(芳香族炭化水素基、アリール基等ともいう)としては、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ビフェニリル基等が挙げられる。

これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0103] 一般式(2)において、Zで表される複素環基としては、非芳香族複素環基、芳香族複素環基等が挙げられ、非芳香族複素環基としては、例えば、エポキシ環、アジリジン環、チラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキサラン環、ピロリジン環、ピラゾリ

ジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、 ε -カプロラクトン環、 ε -カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1, 3-ジオキサン環、1, 4-ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1, 1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ[2, 2, 2]-オクタン環等から導出される基を挙げられる。

これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0104] 芳香族複素環基としては、例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基（例えば、1, 2, 4-トリアゾール-1-イル基、1, 2, 3-トリアゾール-1-イル基等）、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等が挙げられる。

これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0105] 一般式(2)において、A1が、P-Cと共に形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、アンスラアントレン環等が挙げられる。

これらの環はさらに、一般式（１）で例示した置換基を有してもよい。

[0106] 一般式（２）において、 A_1 が $P-C$ と共に形成す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、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、アザカルバゾール環等が挙げられる。

ここで、アザカルバゾール環とは、上記カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が１つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

これらの環はさらに、一般式（１）で例示した置換基を有してもよい。

[0107] 一般式（２）の A_3 で表される、 $-C(R_{01})=C(R_{02})-$ 、 $-N=C(R_{02})-$ 、 $-C(R_{01})=N-$ において、 R_{01} 、 R_{02} で各々表される置換基は、一般式（１）で例示した置換基と同義である。

[0108] 一般式（２）において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される２座の配位子としては、フェニルピリジン、フェニルピラゾール、フェニルイミダゾール、フェニルトリアゾール、フェニルテトラゾール、ピラザボール、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。

[0109] また、 j_1 は１～３の整数を表し、 j_2 は０～２の整数を表すが、 $j_1 + j_2$ は２又は３を表す、中でも、 j_2 は０である場合が好ましい。

[0110] 一般式（２）において、 M_1 で表される元素周期表における８族～１０族の遷移金属元素（単に遷移金属ともいう）は、一般式（１）において、 M_1 で表される元素周期表における８族～１０族の遷移金属元素と同義である。

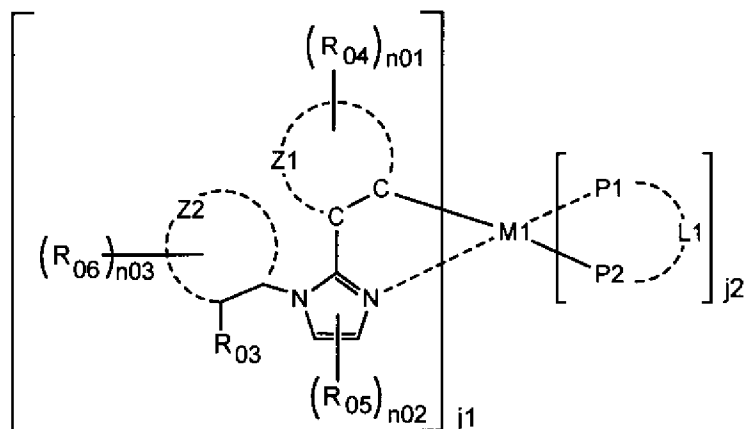
[0111] （一般式（３）で表される化合物）

上記一般式（２）で表される化合物の好ましい態様の一つとして、下記一

般式（３）で表される化合物が挙げられる。

[0112] [化18]

一般式 (3)



[0113] 上記一般式（３）中、 R_{03} は置換基を表し、 R_{04} は水素原子又は置換基を表し、複数の R_{04} は互いに結合して環を形成してもよい。 n_{01} は１～４の整数を表す。 R_{05} は水素原子又は置換基を表し、複数の R_{05} は互いに結合して環を形成してもよい。 n_{02} は１～２の整数を表す。 R_{06} は水素原子又は置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。 n_{03} は１～４の整数を表す。 $Z1$ は $C-C$ と共に６員の芳香族炭化水素環若しくは、５員又は６員の芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 $Z2$ は炭化水素環基又は複素環基を形成するのに必要な原子群を表す。 $P1-L1-P2$ は２座の配位子を表し、 $P1$ 、 $P2$ は各々独立に炭素原子、窒素原子又は酸素原子を表す。 $L1$ は $P1$ 、 $P2$ と共に２座の配位子を形成する原子群を表す。 $j1$ は１～３の整数を表し、 $j2$ は０～２の整数を表すが、 $j1+j2$ は２又は３である。 $M1$ は元素周期表における８族～１０族の遷移金属元素を表す。 R_{03} と R_{06} 、 R_{04} と R_{06} 及び R_{05} と R_{06} は互いに結合して環を形成してもよい。

[0114] 一般式（３）において、 R_{03} 、 R_{04} 、 R_{05} 、 R_{06} で各々表される置換基は、一般式（１）で例示した置換基を有してもよい。

[0115] 一般式(3)において、Z1がC-Cと共に形成する6員の芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環等が挙げられる。

これらの環はさらに、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0116] 一般式(3)において、Z1がC-Cと共に形成する5員又は6員の芳香族複素環としては、例えば、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、チオフェン環、フラン環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

これらの環はさらに、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0117] 一般式(3)において、Z2で表される炭化水素環基としては、非芳香族炭化水素環基、芳香族炭化水素環基が挙げられ、非芳香族炭化水素環基としては、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0118] また、芳香族炭化水素環基(芳香族炭化水素基、アリール基等ともいう)としては、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ビフェニリル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0119] 一般式(3)において、Z2で表される複素環基としては、非芳香族複素環基、芳香族複素環基等が挙げられ、非芳香族複素環基としては、例えば、エポキシ環、アジリジン環、チラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキソラン環、ピロリジン環、ピラゾリジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、ε-カプロラクトン環、ε-カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミ

ジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1, 3-ジオキサン環、1, 4-ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1, 1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ[2, 2, 2]-オクタン環等から導出される基を挙げることができる。これらの基は無置換でもよく、また、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0120] 芳香族複素環基としては、例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基（例えば、1, 2, 4-トリアゾール-1-イル基、1, 2, 3-トリアゾール-1-イル基等）、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等が挙げられる。

[0121] これらの環は無置換でもよく、さらに一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0122] 一般式(3)において、Z1及びZ2で形成される基としては、ベンゼン環が好ましい。

[0123] 一般式(3)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子は、一般式(1)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子と同義である。

[0124] 一般式(3)において、M1で表される元素周期表における8族～10族の遷移金属元素は、一般式(1)において、M1で表される元素周期表における8族～10族の遷移金属元素と同義である。

[0125] また、燐光発光性化合物は、有機電界発光素子30の発光層32c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。

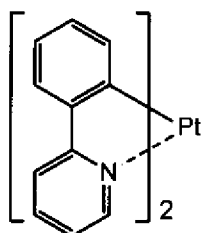
[0126] 本実施形態の有機電界発光素子に適用される燐光発光性化合物は、好ましくは元素の周期表で8～10族の金属を含有する錯体系化合物であり、さらに好ましくはイリジウム化合物、オスミウム化合物、又は白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

[0127] 以下に燐光発光性化合物の具体例（Pt-1～Pt-3、A-1、Ir-1～Ir-50）を示す。なお、本実施形態の有機電界発光素子に適用される燐光発光性化合物は、これらに限定されない。なお、これらの化合物において、m及びnは繰り返し数を表す。

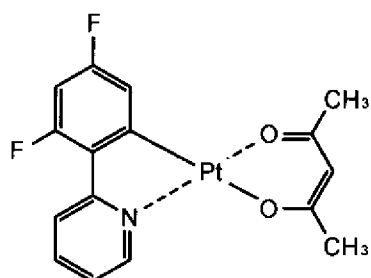
[0128]

[化19]

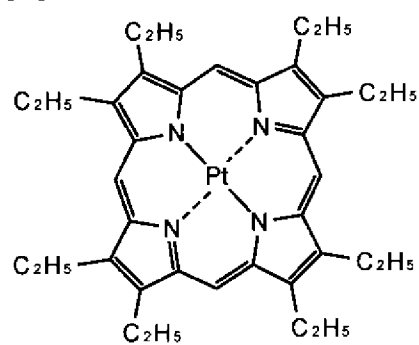
Pt-1



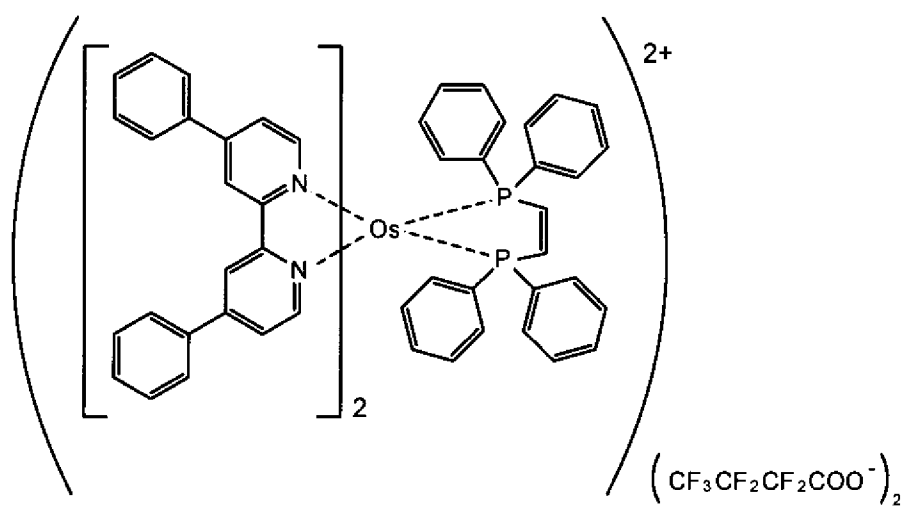
Pt-2



Pt-3



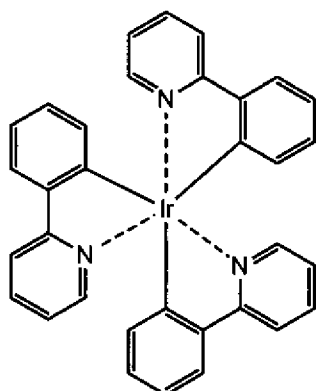
A-1



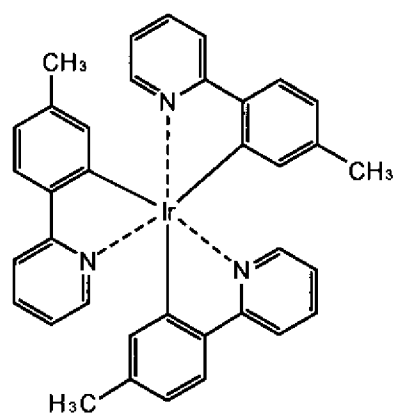
[0129]

[化20]

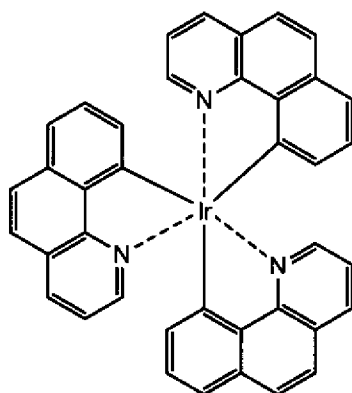
Ir-1



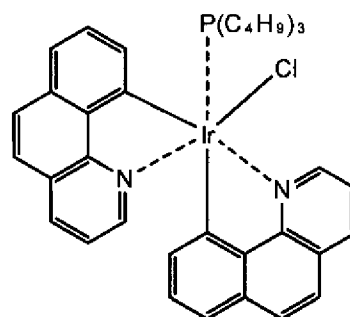
Ir-2



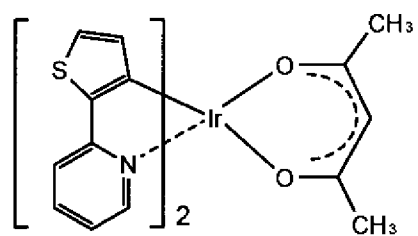
Ir-3



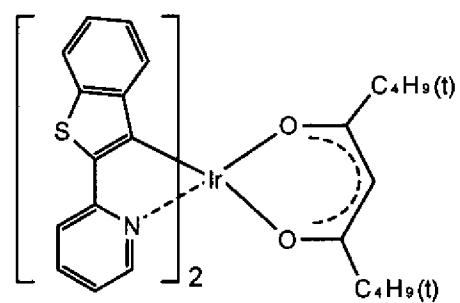
Ir-4



Ir-5



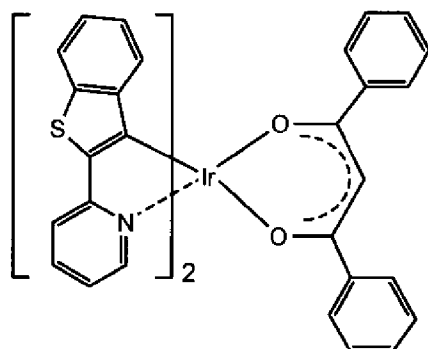
Ir-6



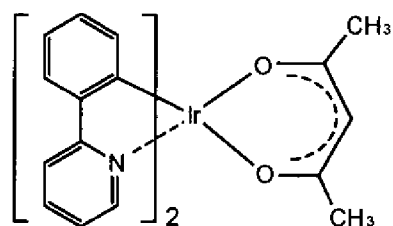
[0130]

[化21]

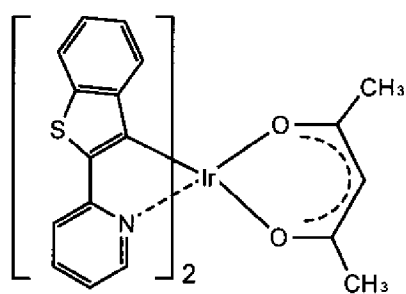
Ir-7



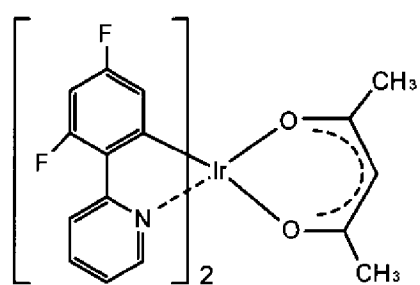
Ir-8



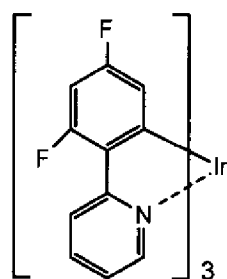
Ir-9



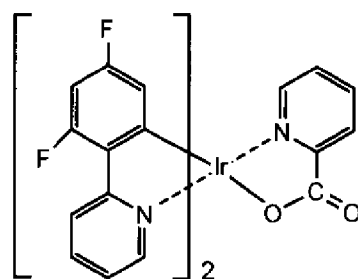
Ir-10



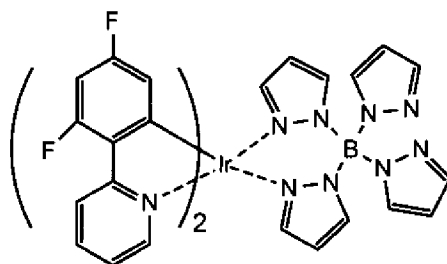
Ir-11



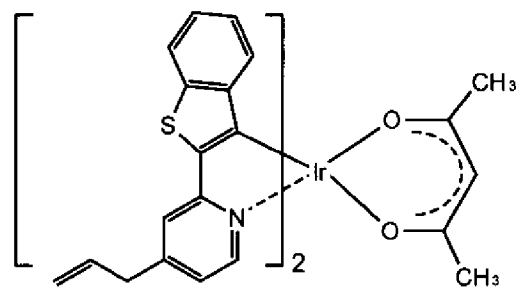
Ir-12



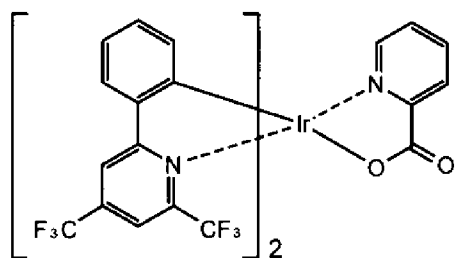
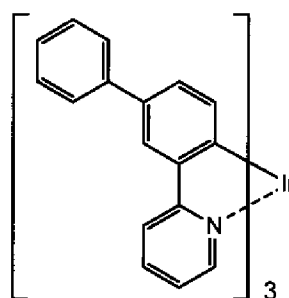
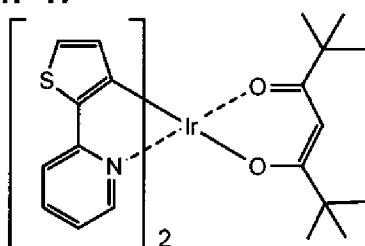
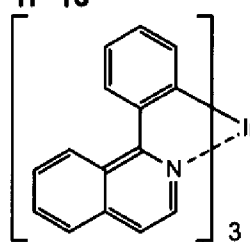
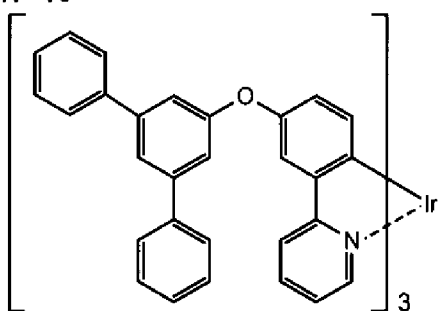
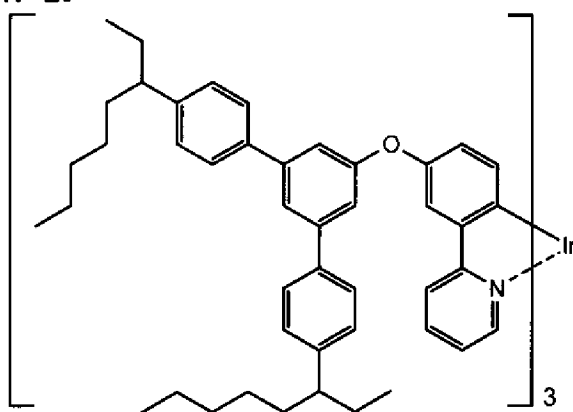
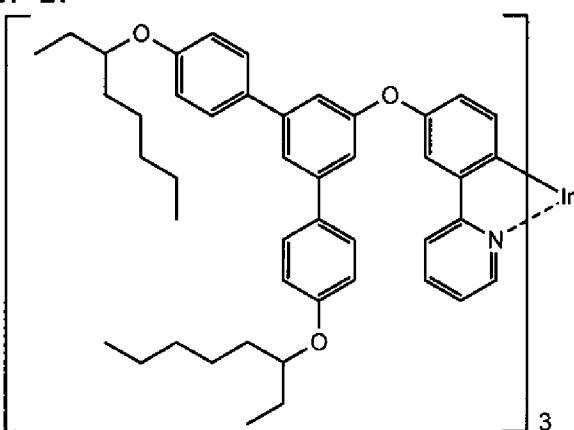
Ir-13



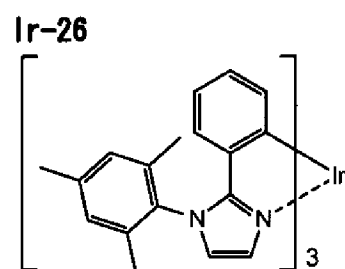
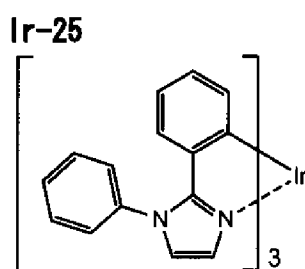
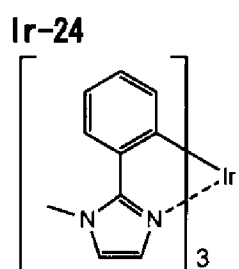
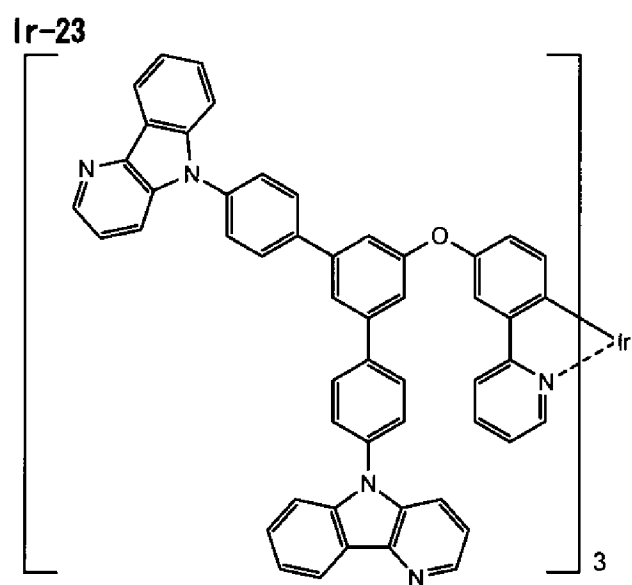
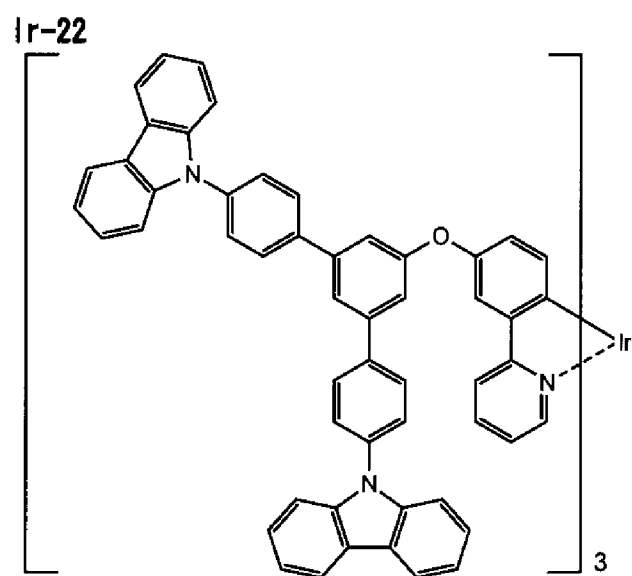
Ir-14



[0131] [化22]

Ir-15**Ir-16****Ir-17****Ir-18****Ir-19****Ir-20****Ir-21**

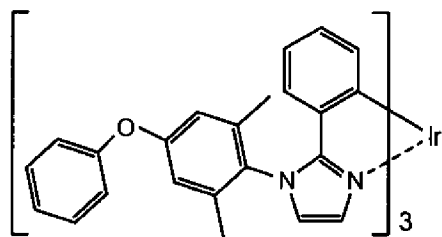
[0132] [化23]



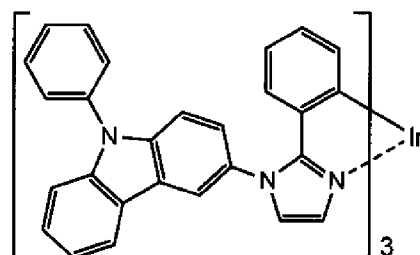
[0133]

[化24]

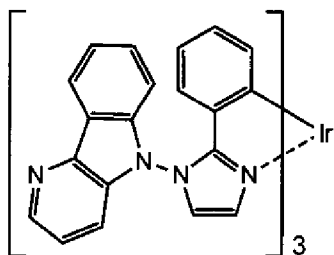
Ir-27



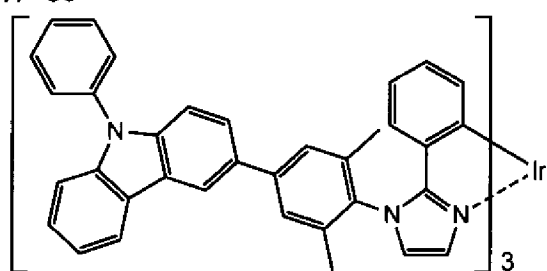
Ir-28



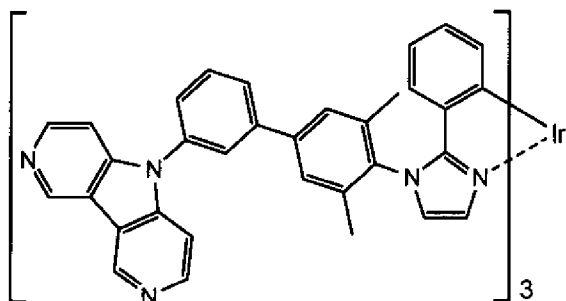
Ir-29



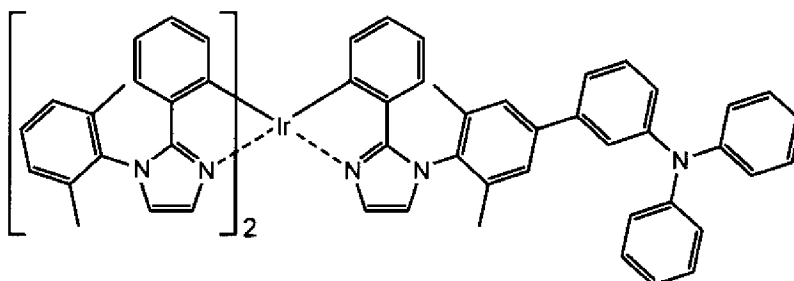
Ir-30



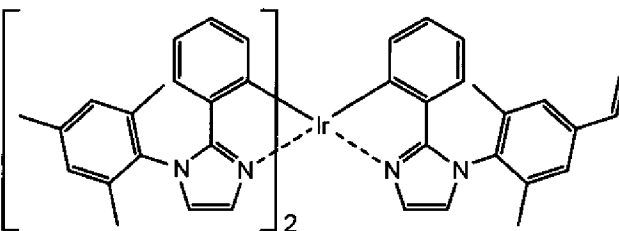
Ir-31



Ir-32

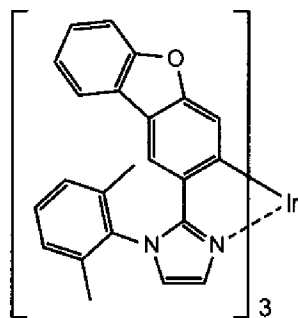


Ir-33

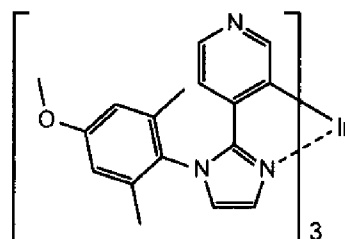


[0134] [化25]

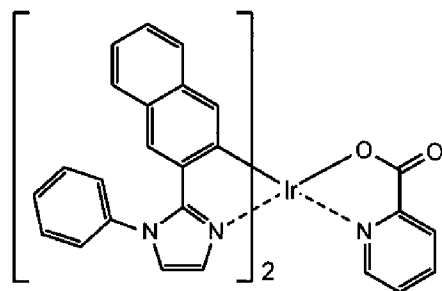
Ir-34



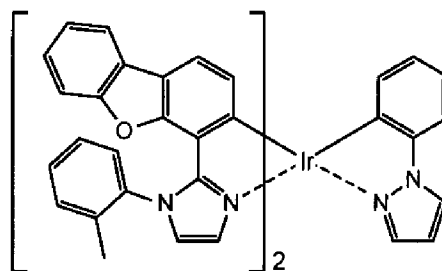
Ir-35



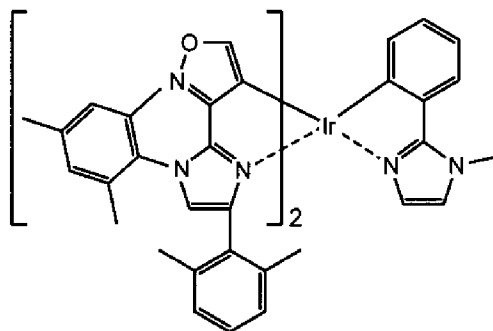
Ir-36



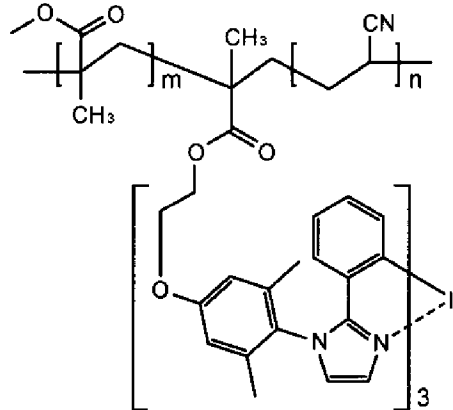
Ir-37



Ir-38

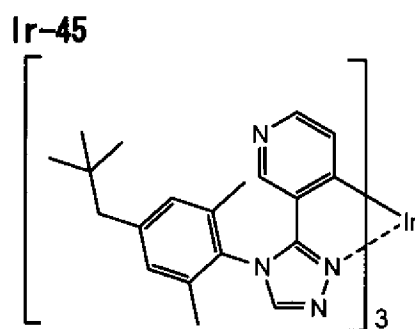
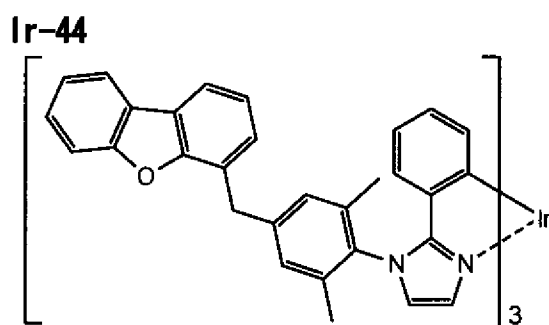
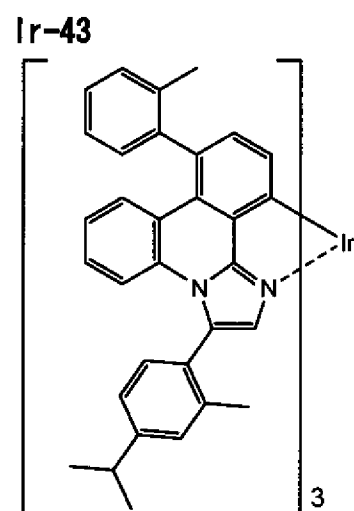
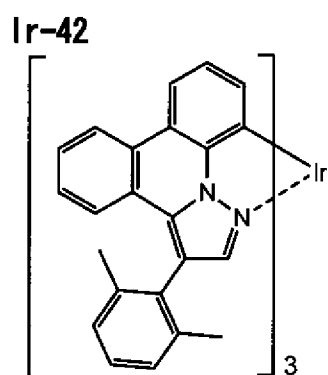
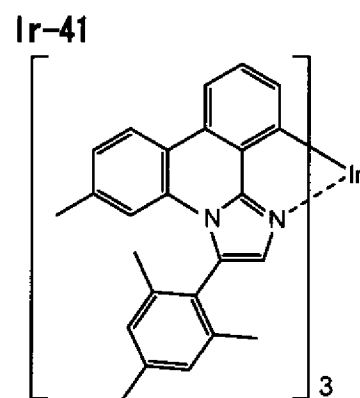
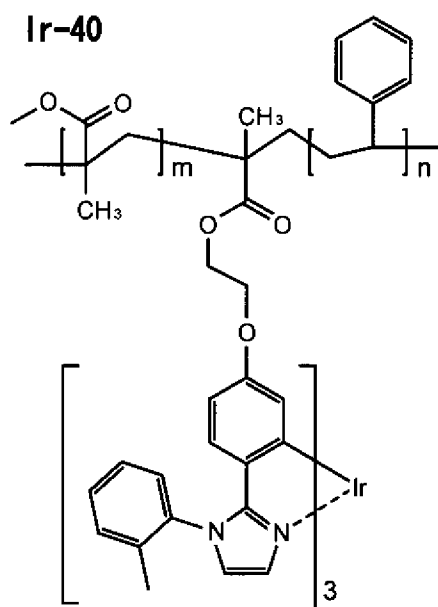


Ir-39



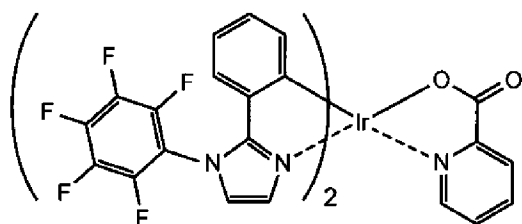
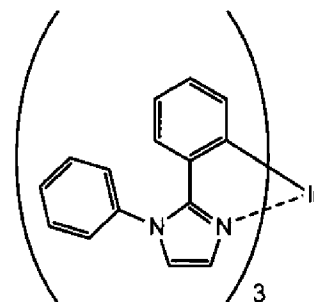
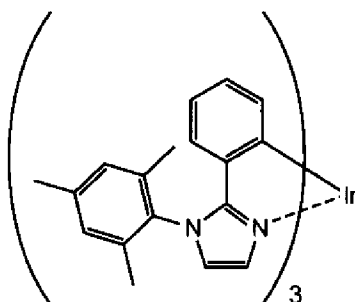
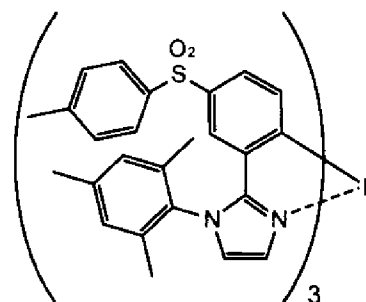
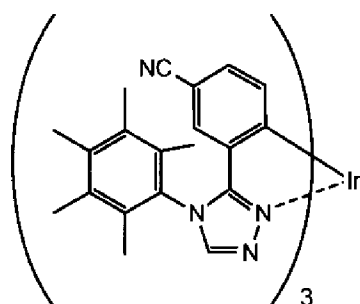
[0135]

[化26]



[0136]

[化27]

Ir-46**Ir-47****Ir-48****Ir-49****Ir-50**

[0137] 上記の燐光発光性化合物（燐光発光性金属錯体等ともいう）は、例えば、Organic Letters誌 vol.3 No.16 2579～2581頁(2001)、Inorganic Chemistry, 第30巻 第8号 1685～1687頁(1991年)、J. Am. Chem. Soc., 123巻 4304頁(2001年)、Inorganic Chemistry, 第40巻第7号 1704～1711頁(2001年)、Inorganic Chemistry, 第41巻 第12号 3055～3066頁(2002年)、New Journal of Chemistry,

, 第26巻 1171頁(2002年)、European Journal of Organic Chemistry, 第4巻 695～709頁(2004年)、さらにこれらの文献中に記載の参考文献等の方法を適用することにより合成できる。

[0138] (蛍光発光材料)

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

[0139] [注入層：正孔注入層、電子注入層]

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発光層32cの間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123～166頁)に詳細に記載されており、正孔注入層32aと電子注入層32eとがある。

[0140] 注入層は、必要に応じて設けることができる。正孔注入層32aであれば、アノードと発光層32c又は正孔輸送層32bの間、電子注入層32eであればカソードと発光層32c又は電子輸送層32dとの間に配置される。

[0141] 正孔注入層32aは、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニン層、酸化バナジウムに代表される酸化物層、アモルファスカーボン層、ポリアニリン(エメラルディン)やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子層等が挙げられる。

[0142] 電子注入層32eは、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属層、フッ化カリウムに代表されるアルカリ金属ハライド層、フッ化マグネシウムに代表される

アルカリ土類金属化合物層、酸化モリブデンに代表される酸化物層等が挙げられる。電子注入層 3 2 e はごく薄い層であることが望ましく、素材にもよるがその厚さは 1 nm ~ 10 μm の範囲が好ましい。

[0143] [正孔輸送層]

正孔輸送層 3 2 b 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 3 2 a、電子阻止層も正孔輸送層 3 2 b に含まれる。正孔輸送層 3 2 b は単層又は複数層設けることができる。

[0144] 正孔輸送材料としては、正孔の注入又は輸送、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。

[0145] 正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第 3 級アミン化合物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。

[0146] 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 - ジー p - トリルアミノフェニル) プロパン ; 1, 1 - ビス (4 - ジー 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 - ジー 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 - ジー p - トリルアミノフ

エニル) 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、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個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4' -ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4'' -トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ] トリフェニルアミン(MTDATA)等が挙げられる。

[0147] さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、p型-Si、p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

[0148] また、特開平11-251067号公報、J.Huang et.al., Applied Physics Letters, 80(2002), p.139に記載されているような、いわゆるp型正孔輸送材料を用いることもできる。高効率の発光素子が得られることから、これらの材料を用いることが好ましい。

[0149] 正孔輸送層32bは、上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層32bの厚さについては特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5~200nmである。この正孔輸送層32bは、上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。

[0150] また、正孔輸送層 3 2 b の材料に不純物をドーピングして p 性を高くすることもできる。その例としては、特開平 4 - 2 9 7 0 7 6 号公報、特開 2 0 0 0 - 1 9 6 1 4 0 号公報、同 2 0 0 1 - 1 0 2 1 7 5 号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。

[0151] このように、正孔輸送層 3 2 b の p 性を高くすると、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。

[0152] [電子輸送層]

電子輸送層 3 2 d 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 3 2 e、正孔阻止層（図示せず）も電子輸送層 3 2 d に含まれる。電子輸送層 3 2 d は単層構造又は複数層の積層構造として設けることができる。

[0153] 単層構造の電子輸送層 3 2 d、及び積層構造の電子輸送層 3 2 d において発光層 3 2 c に隣接する層部分を構成する電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）としては、カソードより注入された電子を発光層 3 2 c に伝達する機能を有していればよい。このような材料としては従来公知の化合物の中から任意に選択して用いることができる。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、アントロン誘導体及び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、電子輸送層 3 2 d の材料として用いることができる。さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

[0154] また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq3）、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-ジブロモ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、ト

リス（５－メチル－８－キノリノール）アルミニウム、ビス（８－キノリノール）亜鉛（Znq）等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送層32dの材料として用いることができる。

[0155] その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又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ても、電子輸送層32dの材料として好ましく用いることができる。また、発光層32cの材料としても例示されるジスチリルピラジン誘導体も電子輸送層32dの材料として用いることができ、正孔注入層32a、正孔輸送層32bと同様にn型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送層32dの材料として用いることができる。

[0156] 電子輸送層32dは、上記材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層32dの厚さについては特に制限はないが、通常は5nm～5μm程度、好ましくは5～200nmである。電子輸送層32dは上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。

[0157] また、電子輸送層32dに不純物をドーピングし、n性を高くすることもできる。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。さらに電子輸送層32dには、カリウムやカリウム化合物などを含有させることが好ましい。カリウム化合物としては、例えば、フッ化カリウム等を用いることができる。このように電子輸送層32dのn性を高くすると、より低消費電力の素子を作製することができる。

[0158] また電子輸送層32dの材料（電子輸送性化合物）として、好ましくは、下記一般式（4）で表される化合物を用いることができる。

[0159] (Ar1)_{n1}-Y1・・・一般式（4）

- [0160] 一般式(4)の式中、 n_1 は1以上の整数を表し、 Y_1 は n_1 が1の場合は置換基を表し、 n_1 が2以上の場合は単なる結合手又は n_1 価の連結基を表す。 A_{r1} は後記する一般式(A)で表される基を表し、 n_1 が2以上の場合、複数の A_{r1} は同一でも異なってもよい。ただし、上記一般式(4)で表される化合物は分子内に3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環を少なくとも2つ有する。
- [0161] 一般式(4)において、 Y_1 で表される置換基の例としては、一般式(1)で例示した置換基と同義である。
- [0162] 一般式(4)において、 Y_1 で表される n_1 価の連結基としては、具体的には、2価の連結基、3価の連結基、4価の連結基等が挙げられる。
- [0163] 一般式(4)において、 Y_1 で表される2価の連結基としては、アルキレン基(例えば、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、プロピレン基、エチルエチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、2, 2, 4-トリメチルヘキサメチレン基、ヘプタメチレン基、オクタメチレン基、ノナメチレン基、デカメチレン基、ウンデカメチレン基、ドデカメチレン基、シクロヘキシレン基(例えば、1, 6-シクロヘキサンジイル基等)、シクロペンチレン基(例えば、1, 5-シクロペンタンジイル基など)等)、アルケニレン基(例えば、ビニレン基、プロペニレン基、ブテニレン基、ペンテニレン基、1-メチルビニレン基、1-メチルプロペニレン基、2-メチルプロペニレン基、1-メチルペンテニレン基、3-メチルペンテニレン基、1-エチルビニレン基、1-エチルプロペニレン基、1-エチルブテニレン基、3-エチルブテニレン基等)、アルキニレン基(例えば、エチニレン基、1-プロピニレン基、1-ブチニレン基、1-ペンチニレン基、1-ヘキシニレン基、2-ブチニレン基、2-ペンチニレン基、1-メチルエチニレン基、3-メチル-1-プロピニレン基、3-メチル-1-ブチニレン基等)、アリーレン基(例えば、*o*-フェニレン基、*p*-フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、ナフタセンジイル基、ピレンジイル基、ナフチルナフタレンジイル基、ビフェニルジイル基(例えば、[1

、1'-ビフェニル]-4,4'-ジイル基、3,3'-ビフェニルジイル基、3,6-ビフェニルジイル基等)、テルフェニルジイル基、クアテルフェニルジイル基、キンクフェニルジイル基、セキシフェニルジイル基、セプチフェニルジイル基、オクチフェニルジイル基、ノビフェニルジイル基、デシフェニルジイル基等)、ヘテロアリーレン基(例えば、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環(モノアザカルボリン環ともいい、カルボリン環を構成する炭素原子のひとつが窒素原子で置き換わった構成の環構成を示す)、トリアゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピラジン環、キノキサリン環、チオフェン環、オキサジアゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、インドール環からなる群から導出される2価の基等)、酸素や硫黄などのカルコゲン原子、3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基等(ここで、3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環としては、好ましくはN、O及びSから選択されたヘテロ原子を、縮合環を構成する元素として含有する芳香族複素縮合環であることが好ましく、具体的には、アクリジン環、ベンゾキノリン環、カルバゾール環、フェナジン環、フェナントリジン環、フェナントロリン環、カルボリン環、サイクラジン環、キンドリン環、テペニジン環、キニンドリン環、トリフェノジチアジン環、トリフェノジオキサジン環、フェナントラジン環、アントラジン環、ペリミジン環、ジアザカルバゾール環(カルボリン環を構成する炭素原子の任意のひとつが窒素原子で置き換わったものを表す)、フェナントロリン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、ナフトフラン環、ナフトチオフェン環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフェン環、ナフトジフラン環、ナフトジチオフェン環、アントラフラン環、アントラジフラン環、アントラチオフェン環、アントラジチオフェン環、チアントレン環、フェノキサチン環、チオファントレン環(ナフトチオフェン環)等)が挙げられる。

[0164] 一般式(4)において、Y1で表される3価の連結基としては、例えば、エタントリイル基、プロパントリイル基、ブタントリイル基、ペンタントリ

イル基、ヘキサントリイル基、ヘプタントリイル基、オクタントリイル基、ノナントリイル基、デカントリイル基、ウンデカントリイル基、ドデカントリイル基、シクロヘキサントリイル基、シクロペンタントリイル基、ベンゼントリイル基、ナフタレントリイル基、ピリジントリイル基、カルバゾールトリイル基等が挙げられる。

[0165] 一般式(4)において、Y1で表される4価の連結基としては、上記の3価の基にさらにひとつ結合基がついたものであり、例えば、プロパンジイリデン基、1,3-プロパンジイル-2-イリデン基、ブタンジイリデン基、ペンタンジイリデン基、ヘキサンジイリデン基、ヘプタンジイリデン基、オクタンジイリデン基、ノナンジイリデン基、デカンジイリデン基、ウンデカンジイリデン基、ドデカンジイリデン基、シクロヘキサンジイリデン基、シクロペンタンジイリデン基、ベンゼンテトライル基、ナフタレンテトライル基、ピリジンテトライル基、カルバゾールテトライル基等が挙げられる。

[0166] なお、上記の2価の連結基、3価の連結基、4価の連結基は、各々さらに一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。

[0167] 一般式(4)で表される化合物の好ましい態様としては、Y1が3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基を表すことが好ましく、当該3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環としては、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環が好ましい。また、n1が2以上であることが好ましい。

[0168] さらに、一般式(4)で表される化合物は、分子内に上記の3環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環を少なくとも2つ有する。

[0169] また、Y1がn1価の連結基を表す場合、一般式(4)で表される化合物の三重項励起エネルギーを高く保つために、Y1は非共役であることが好ましく、さらに、Tg(ガラス転移点、ガラス転移温度ともいう)を向上させる点から、芳香環(芳香族炭化水素環+芳香族複素環)で構成されていることが好ましい。

[0170] ここで、非共役とは、連結基が単結合(一重結合ともいう)と二重結合の

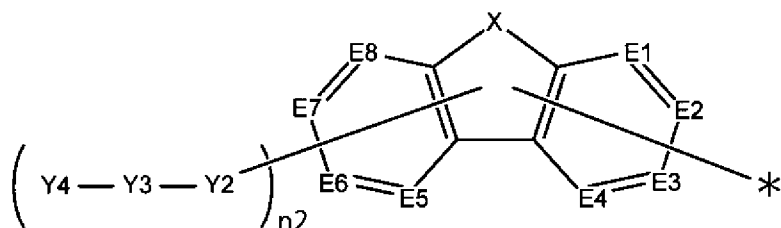
繰り返しによって表記できないか、又は連結基を構成する芳香環同士の共役が立体的に切断されている場合を意味する。

[0171] (一般式 (A) で表される基)

一般式（４）中における A_{r1} は、下記一般式（Ａ）で表される基を表す

[0172] [化28]

一般式(A)



[0173] 式中、Xは、 $-N(R)-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 又は $-Si(R)(R')-$ を表し、E1～E8は、 $-C(R1)=$ 又は $-N=$ を表し、R、R'及びR1は水素原子、置換基又はY1との連結部位を表す。＊はY1との連結部位を表す。Y2は単なる結合手又は2価の連結基を表す。Y3及びY4は、各々5員又は6員の芳香族環から導出される基を表し、少なくとも一方は環構成原子として窒素原子を含む芳香族複素環から導出される基を表す。n2は1～4の整数を表す。

[0174] ここで、一般式 (A) の X で表される $-N(R)-$ 又は $-Si(R)(R')$ - において、さらに、 $E1 \sim E8$ で表される $-C(R1)-$ において、 R 、 R' 及び $R1$ で各々表される置換基は、一般式 (1) で例示した置換基と同義である。

[0175] また、一般式（A）において、Y₂で表される2価の連結基としては、一般式（4）において、Y₁で表される2価の連結基と同義である。

[0176] さらに、一般式 (A) において、Y 3 及び Y 4 で各々表される 5 員又は 6 員の芳香族環から導出される基の形成に用いられる 5 員又は 6 員の芳香族環

としては、ベンゼン環、オキサゾール環、チオフェン環、フラン環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ジアジン環、トリアジン環、イミダゾール環、イソオキサゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

[0177] さらに、Y 3 及び Y 4 で各々表される 5 員又は 6 員の芳香族環から導出される基の少なくとも一方は、環構成原子として窒素原子を含む芳香族複素環から導出される基を表すが、当該環構成原子として窒素原子を含む芳香族複素環としては、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ジアジン環、トリアジン環、イミダゾール環、イソオキサゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

[0178] (Y 3 で表される基の好ましい態様)

一般式 (A) において、Y 3 で表される基としては、上記 6 員の芳香族環から導出される基であることが好ましく、さらに好ましくは、ベンゼン環から導出される基である。

[0179] (Y 4 で表される基の好ましい態様)

一般式 (A) において、Y 4 で表される基としては、上記 6 員の芳香族環から導出される基であることが好ましく、さらに好ましくは、窒素原子を環構成原子として含む芳香族複素環から導出される基であり、特に好ましくは、Y 4 がピリジン環から導出される基である。

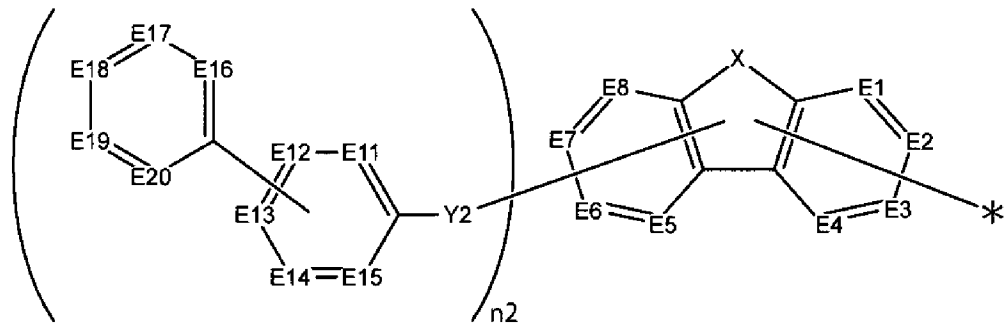
[0180] (一般式 (A) で表される基の好ましい態様)

一般式 (A) で表される基の好ましい態様としては、下記一般式 (A-1)、(A-2)、(A-3)、又は (A-4) のいずれかで表される基が挙げられる。

[0181]

[化29]

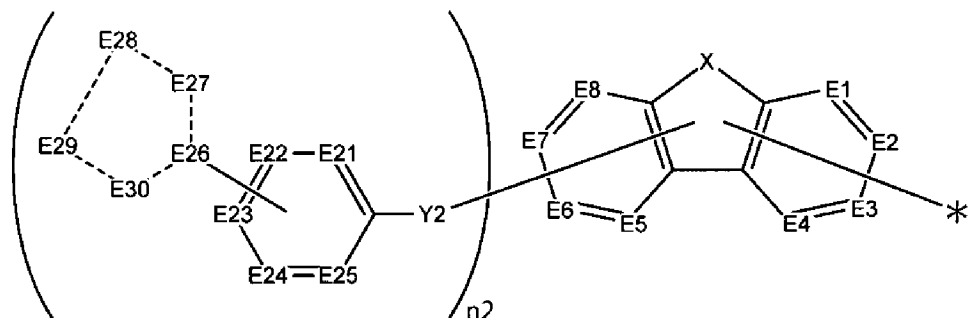
一般式(A-1)



[0182] 上記一般式(A-1)の式中、Xは-N(R)-、-O-、-S-又は-Si(R)(R')-を表し、E1~E8は-C(R1)=又は-N=を表し、R、R'及びR1は水素原子、置換基又はY1との連結部位を表す。Y2は単なる結合手又は2価の連結基を表す。E11~E20は、-C(R2)=又は-N=を表し、少なくとも1つは-N=を表す。R2は、水素原子、置換基又は連結部位を表す。但し、E11、E12の少なくとも1つは-C(R2)=を表し、R2は連結部位を表す。n2は1~4の整数を表す。
*は、上記一般式(4)のY1との連結部位を表す。

[0183] [化30]

一般式(A-2)

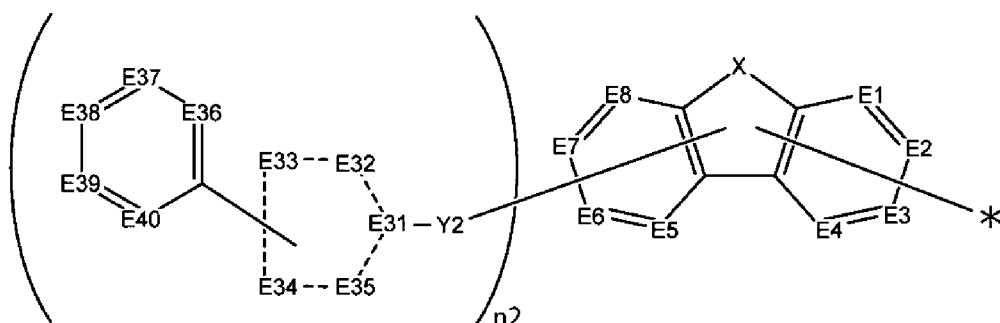


[0184] 上記一般式(A-2)の式中、Xは-N(R)-、-O-、-S-又は-

$\text{Si}(\text{R})(\text{R}')-$ を表し、 $\text{E}1 \sim \text{E}8$ は $-\text{C}(\text{R}1)=$ 又は $-\text{N}=$ を表し、 R 、 R' 及び $\text{R}1$ は水素原子、置換基又は $\text{Y}1$ との連結部位を表す。 $\text{Y}2$ は単なる結合手又は2価の連結基を表す。 $\text{E}21 \sim \text{E}25$ は $-\text{C}(\text{R}2)=$ 又は $-\text{N}=$ を表し、 $\text{E}26 \sim \text{E}30$ は $-\text{C}(\text{R}2)=$ 、 $-\text{N}=$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 又は $-\text{Si}(\text{R}3)(\text{R}4)-$ を表し、 $\text{E}21 \sim \text{E}30$ の少なくとも1つは $-\text{N}=$ を表す。 $\text{R}2$ は、水素原子、置換基又は連結部位を表し、 $\text{R}3$ 及び $\text{R}4$ は水素原子又は置換基を表す。但し、 $\text{E}21$ 又は $\text{E}22$ の少なくとも1つは $-\text{C}(\text{R}2)=$ を表し、 $\text{R}2$ は連結部位を表す。 $n2$ は1～4の整数を表す。 $*$ は、上記一般式(4)の $\text{Y}1$ との連結部位を表す。

[0185] [化31]

一般式(A-3)

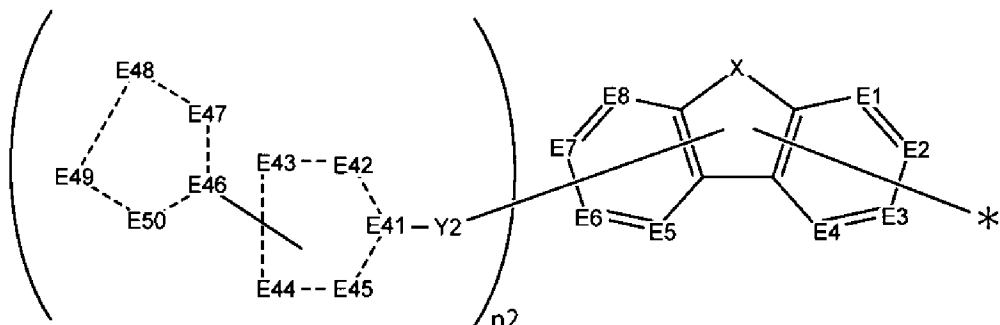


[0186] 上記一般式(A-3)の式中、 X は $-\text{N}(\text{R})-$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 又は $-\text{Si}(\text{R})(\text{R}')-$ を表し、 $\text{E}1 \sim \text{E}8$ は $-\text{C}(\text{R}1)=$ 又は $-\text{N}=$ を表し、 R 、 R' 及び $\text{R}1$ は水素原子、置換基又は $\text{Y}1$ との連結部位を表す。 $\text{Y}2$ は単なる結合手又は2価の連結基を表す。 $\text{E}31 \sim \text{E}35$ は $-\text{C}(\text{R}2)=$ 、 $-\text{N}=$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 又は $-\text{Si}(\text{R}3)(\text{R}4)-$ を表し、 $\text{E}36 \sim \text{E}40$ は $-\text{C}(\text{R}2)=$ 又は $-\text{N}=$ を表し、 $\text{E}31 \sim \text{E}40$ の少なくとも1つは $-\text{N}=$ を表す。 $\text{R}2$ は、水素原子、置換基又は連結部位を表し、 $\text{R}3$ 及び $\text{R}4$ は水素原子又は置換基を表す。但し、 $\text{E}32$ 又は $\text{E}33$ の少なくとも1つは $-\text{C}(\text{R}2)=$ で表され、 $\text{R}2$ は連結部位を表す。 $n2$ は1～4の

整数を表す。＊は、上記一般式（４）のＹ１との連結部位を表す。

[0187] [化32]

一般式(A-4)



[0188] 上記一般式（Ａ－４）の式中、Ｘは－Ｎ（Ｒ）－、－Ｏ－、－Ｓ－又は－Ｓｉ（Ｒ）（Ｒ′）－を表し、Ｅ１～Ｅ８は－Ｃ（Ｒ１）＝又は－Ｎ＝を表し、Ｒ、Ｒ′及びＲ１は水素原子、置換基又はＹ１との連結部位を表す。Ｙ２は単なる結合手又は２価の連結基を表す。Ｅ４１～Ｅ５０は－Ｃ（Ｒ２）＝、－Ｎ＝、－Ｏ－、－Ｓ－又は－Ｓｉ（Ｒ３）（Ｒ４）－を表し、少なくとも１つは－Ｎ＝を表す。Ｒ２は、水素原子、置換基又は連結部位を表し、Ｒ３及びＲ４は水素原子又は置換基を表す。但し、Ｅ４２又はＥ４３の少なくとも１つは－Ｃ（Ｒ２）＝で表され、Ｒ２は連結部位を表す。ｎ２は１～４の整数を表す。＊は、上記一般式（４）のＹ１との連結部位を表す。

[0189] 以下、一般式（Ａ－１）～（Ａ－４）のいずれかで表される基について説明する。

[0190] 一般式（Ａ－１）～（Ａ－４）で表される基のいずれかのＸで表される－Ｎ（Ｒ）－又は－Ｓｉ（Ｒ）（Ｒ′）－において、さらにＥ１～Ｅ８で表される－Ｃ（Ｒ１）＝において、Ｒ、Ｒ′及びＲ１で各々表される置換基は、一般式（１）で例示した置換基と同義である。

[0191] 一般式（Ａ－１）～（Ａ－４）で表される基のいずれかにおいて、Ｙ２で表される２価の連結基としては、一般式（４）において、Ｙ１で表される２

価の連結基と同義である。

[0192] 一般式 (A-1) の E 1 1 ~ E 2 0、一般式 (A-2) の E 2 1 ~ E 3 0、一般式 (A-3) の E 3 1 ~ E 4 0、一般式 (A-4) の E 4 1 ~ E 5 0 で、各々表される $-C(R2)=$ の R 2 で表される置換基は、一般式 (1) の R 1 1, R 1 2 として例示した置換基と同義である。

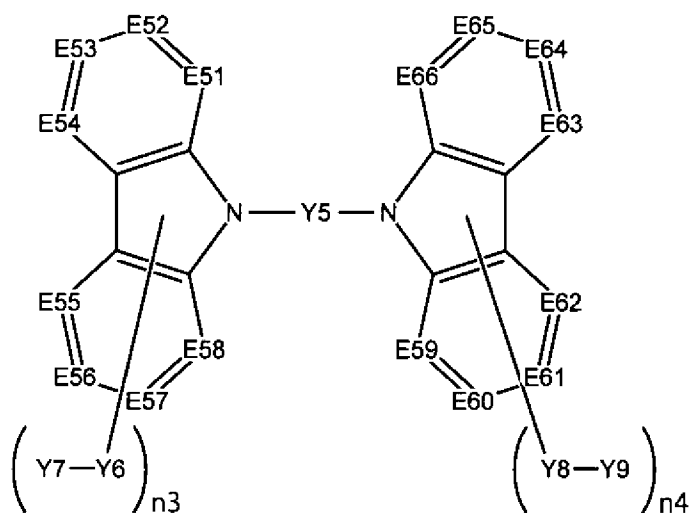
[0193] 次に、一般式 (4) で表される化合物のさらに好ましい態様について説明する。

[0194] (一般式 (5) で表される化合物)

上記一般式 (4) で表される化合物の中でも、下記一般式 (5) で表される化合物が好ましい。以下、一般式 (5) で表される化合物について説明する。

[0195] [化33]

一般式 (5)



[0196] 上記一般式 (5) の式中、Y 5 は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基又はそれらの組み合わせからなる 2 価の連結基を表す。E 5 1 ~ E 6 6 は、各々 $-C(R3)=$ 又は $-N=$ を表し、R 3 は水素原子又は置換基を表す。Y 6 ~ Y 9 は、各々芳香族炭化水素環から導出される基又は芳香族複素環から

導出される基を表し、Y 6 又は Y 7 の少なくとも一方、及び Y 8 又は Y 9 の少なくとも一方は、N原子を含む芳香族複素環から導出される基を表す。n₃ 及び n₄ は 0～4 の整数を表すが、n₃ + n₄ は 2 以上の整数である。

[0197] 一般式 (5) における Y 5 で表されるアリーレン基としては、例えば、*o*-フェニレン基、*p*-フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、ナフタセンジイル基、ピレンジイル基、ナフチルナフタレンジイル基、ビフェニルジイル基（例えば、[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジイル基、3, 3'-ビフェニルジイル基、3, 6-ビフェニルジイル基等）、テルフェニルジイル基、クアテルフェニルジイル基、キンクフェニルジイル基、セキシフェニルジイル基、セプチフェニルジイル基、オクチフェニルジイル基、ノビフェニルジイル基、デシフェニルジイル基等が例示される。

[0198] また一般式 (5) における Y 5 で表されるヘテロアリーレン基としては、例えば、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環（モノアザカルボリン環ともいい、カルボリン環を構成する炭素原子のひとつが窒素原子で置き換わった構成の環構成を示す）、トリアゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピラジン環、キノキサリン環、チオフェン環、オキサジアゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、インドール環からなる群から導出される 2 価の基等が例示される。

[0199] Y 5 で表されるアリーレン基、ヘテロアリーレン基又はそれらの組み合わせからなる 2 価の連結基の好ましい態様としては、ヘテロアリーレン基の中でも、3 環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基を含むことが好ましく、また、当該 3 環以上の環が縮合してなる縮合芳香族複素環から導出される基としては、ジベンゾフラン環から導出される基又はジベンゾチオフェン環から導出される基が好ましい。

[0200] 一般式 (5) において E 5 1～E 6 6 で各々表される -C(R₃)= の R₃ が置換基である場合、その置換基の例としては、一般式 (1) で例示した置換基が適用される。

- [0201] 一般式(5)において、E51～E66で各々表される基としては、E51～E58のうちの6つ以上及びE59～E66のうちの6つ以上が、各々-C(R3)=で表されることが好ましい。
- [0202] 一般式(5)において、Y6～Y9は、各々芳香族炭化水素環から導出される基の形成に用いられる芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、o-テルフェニル環、m-テルフェニル環、p-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。
- [0203] さらに、上記芳香族炭化水素環は、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。
- [0204] 一般式(5)において、Y6～Y9は、各々芳香族複素環から導出される基の形成に用いられる芳香族複素環としては、例えば、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、インダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、シンノリン環、キノリン環、イソキノリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環(カルボリン環を構成する炭素原子の一つが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。
- [0205] さらに、上記芳香族炭化水素環は、一般式(1)で例示した置換基を有してもよい。
- [0206] 一般式(5)において、Y6又はY7の少なくとも一方、及びY8又はY9の少なくとも一方で表されるN原子を含む芳香族複素環から導出される基の形成に用いられるN原子を含む芳香族複素環としては、例えば、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。

[0207] 一般式（５）において、Ｙ７、Ｙ９で表される基としては、各々ピリジン環から導出される基を表すことが好ましい。

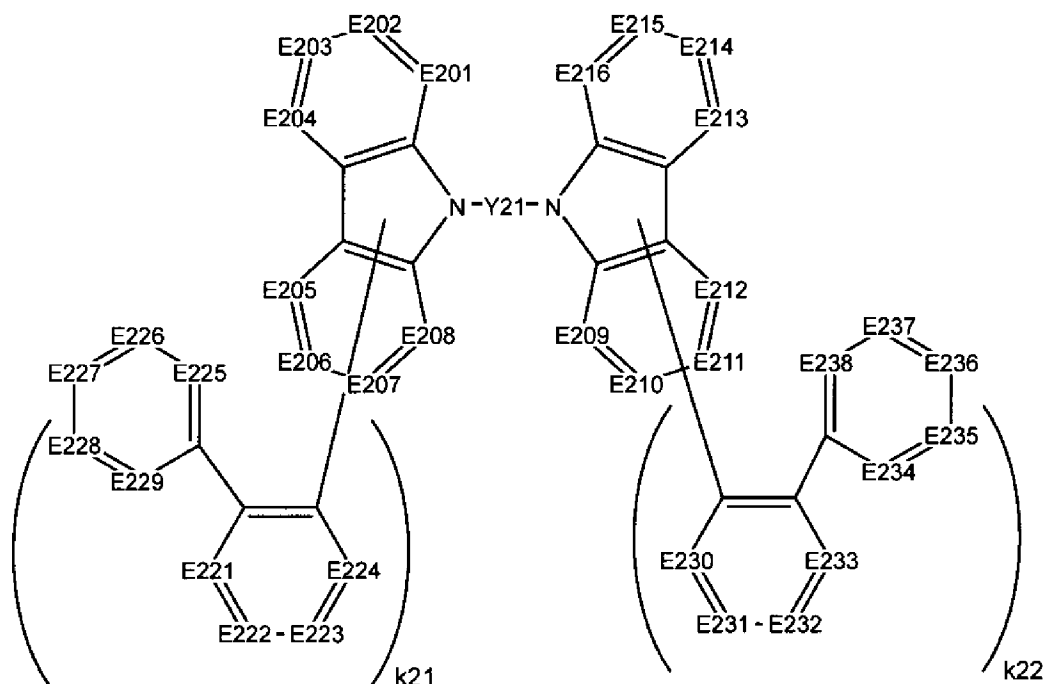
[0208] また、一般式（５）において、Ｙ６及びＹ８で表される基としては、各々ベンゼン環から導出される基を表すことが好ましい。

[0209] （一般式（６）で表される化合物）

上記一般式（５）で表される化合物の中でも、下記一般式（６）で表される化合物が好ましい。

[0210] [化34]

一般式(6)



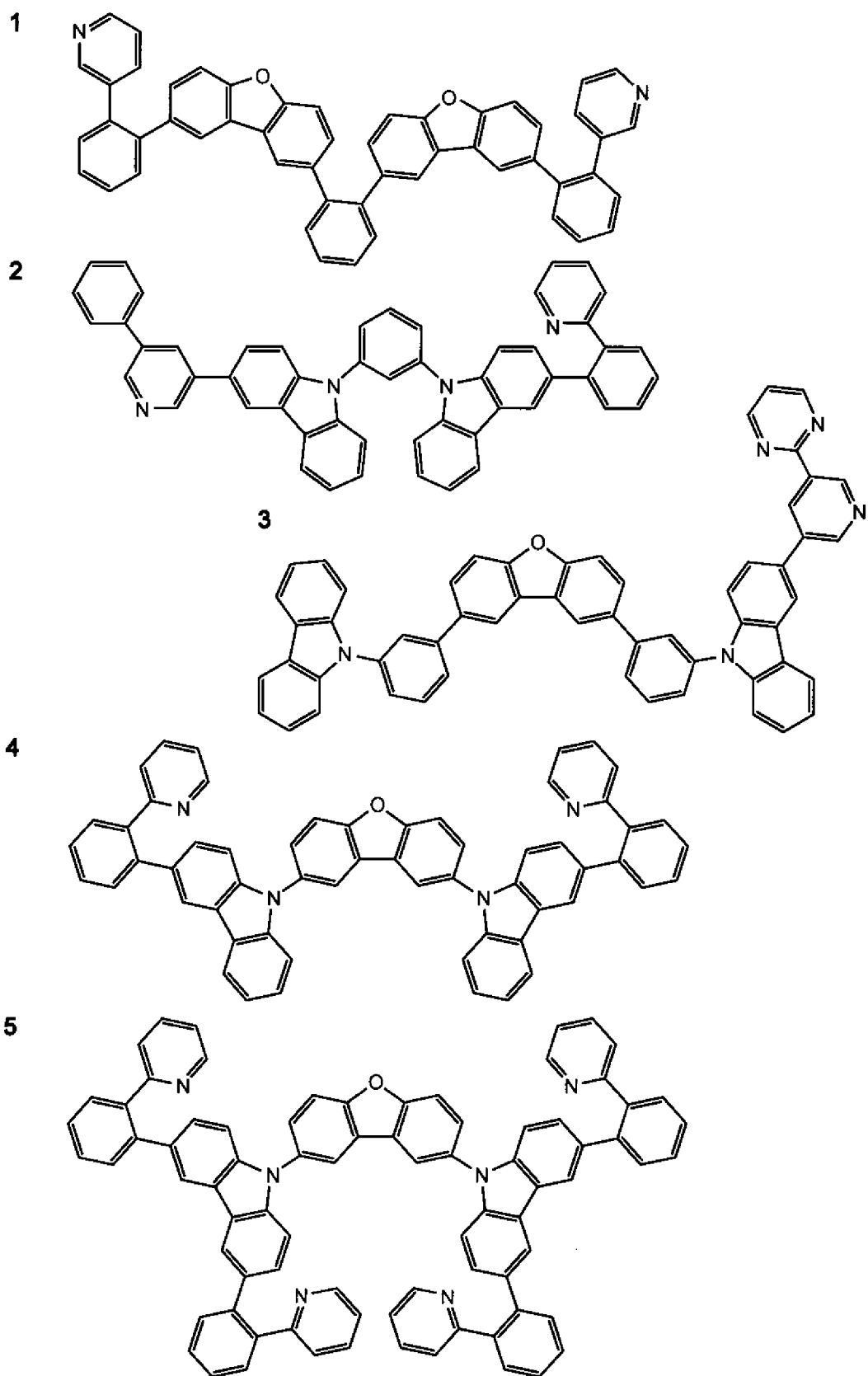
- [0211] 上記一般式(6)の式中、 Y_{21} は、アリーレン基、ヘテロアリーレン基またはそれらの組み合わせからなる2価の連結基を表す。 $E_{201} \sim E_{216}$ 、 $E_{221} \sim E_{238}$ は、各々 $-C(R_{21})=$ または $-N=$ を表し、 R_{21} は水素原子または置換基を表す。ただし、 $E_{221} \sim E_{229}$ の少なくとも1つおよび $E_{230} \sim E_{238}$ の少なくとも1つは $-N=$ を表す。 k_{21} および k_{22} は0～4の整数を表すが、 $k_{21} + k_{22}$ は2以上の整数である。
- [0212] 一般式(6)における Y_{21} は、一般式(5)における Y_5 と同義である。
- [0213] 一般式(6)において、 $E_{201} \sim E_{216}$ 、 $E_{221} \sim E_{238}$ で各々表される $-C(R_{21})=$ の R_{21} が置換基である場合、その置換基の例としては、一般式(1)で例示した置換基が同様に適用される。
- [0214] 一般式(6)において、 $E_{201} \sim E_{208}$ のうちの6つ以上、および $E_{209} \sim E_{216}$ のうちの6つ以上が、各々 $-C(R_{21})=$ で表されることが好ましい。
- [0215] 一般式(6)において、 $E_{225} \sim E_{229}$ の少なくとも1つ、および $E_{234} \sim E_{238}$ の少なくとも1つが $-N=$ を表すことが好ましい。
- [0216] さらに、一般式(6)において、 $E_{225} \sim E_{229}$ のいずれか1つ、および $E_{234} \sim E_{238}$ のいずれか1つが $-N=$ を表すことが好ましい。
- [0217] また、一般式(6)において、 $E_{221} \sim E_{224}$ および $E_{230} \sim E_{233}$ が、各々 $-C(R_{21})=$ で表されることが好ましい態様として挙げられる。
- [0218] さらに、一般式(6)で表される化合物において、 E_{203} が $-C(R_{21})=$ で表され、かつ R_{21} が連結部位を表すことが好ましく、さらに、 E_{211} も同時に $-C(R_{21})=$ で表され、かつ R_{21} が連結部位を表すことが好ましい。
- [0219] さらに、 E_{225} 及び E_{234} が $-N=$ で表されることが好ましく、 E_{2

21～E224およびE230～E233が、各々C(R21)=で表されることが好ましい。

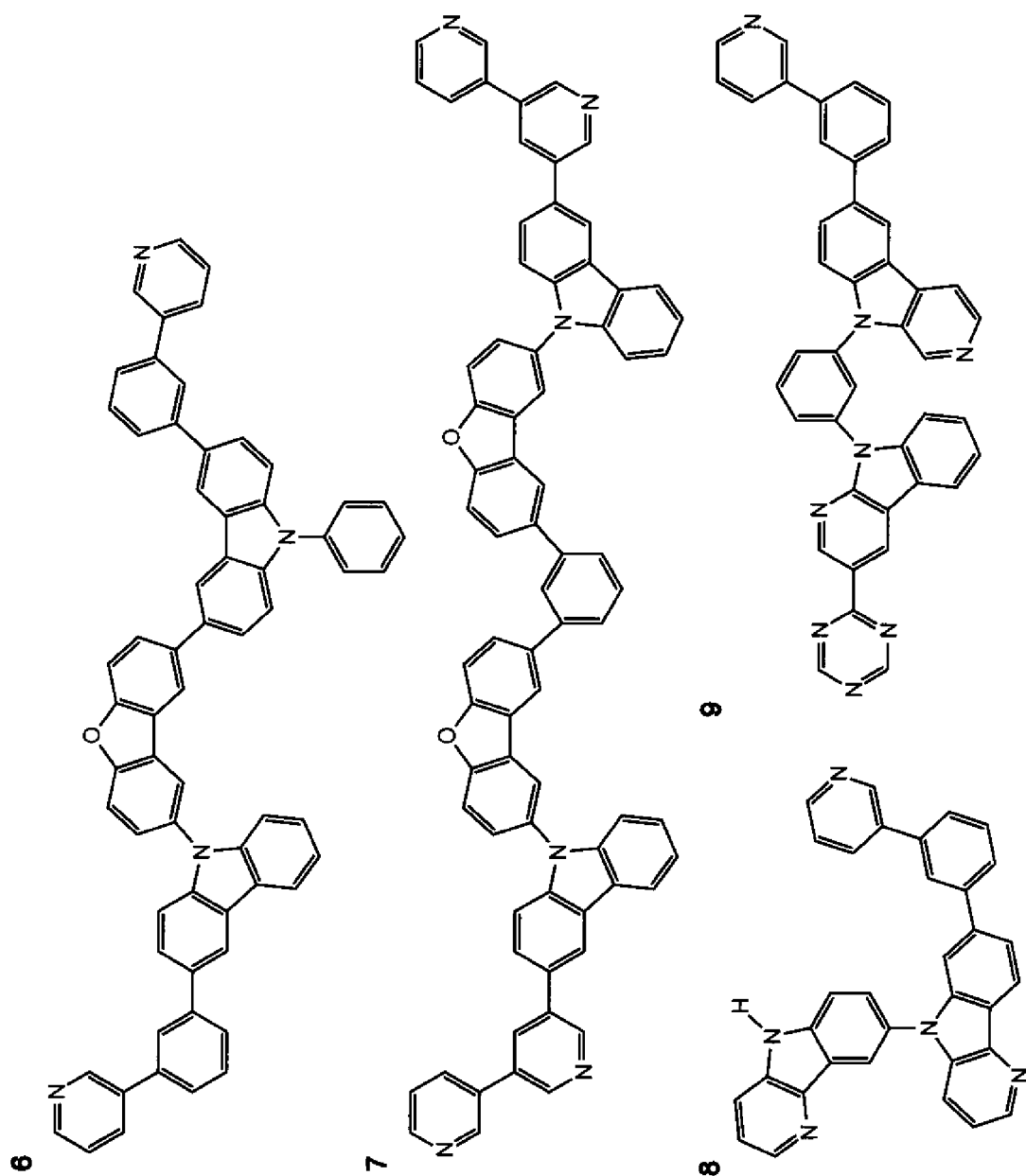
[0220] 以上のような一般式(4)、(5)、または(6)で表される化合物の具体例として、下記に示す化合物(1～118)が例示される。

[0221]

[化35]



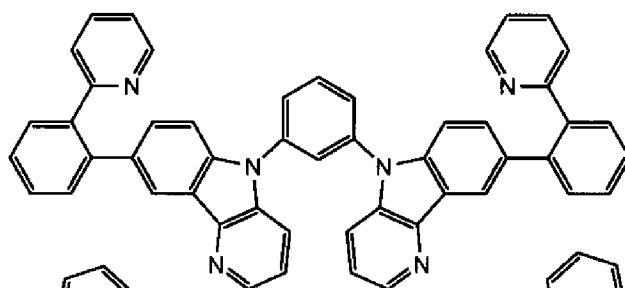
[0222] [化36]



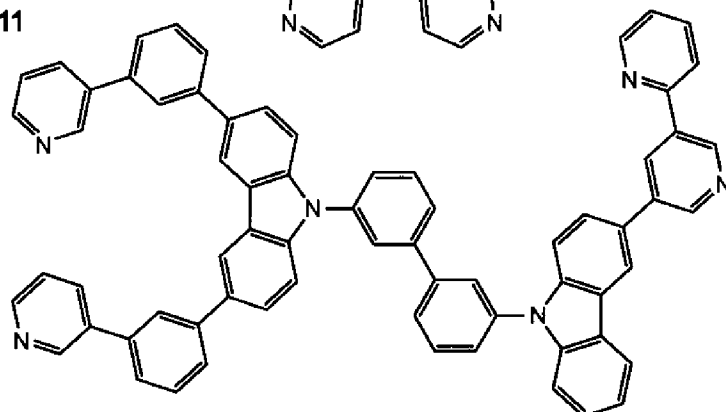
[0223]

[化37]

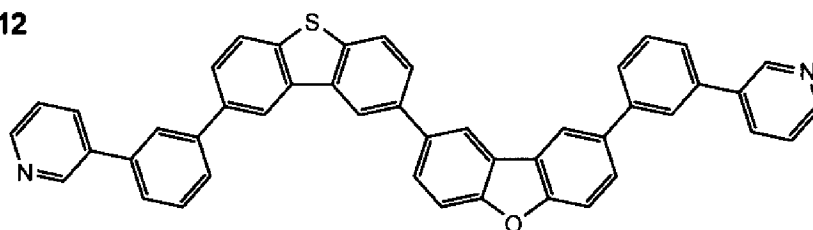
10



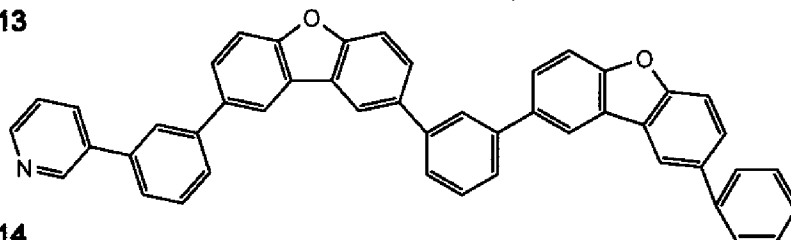
11



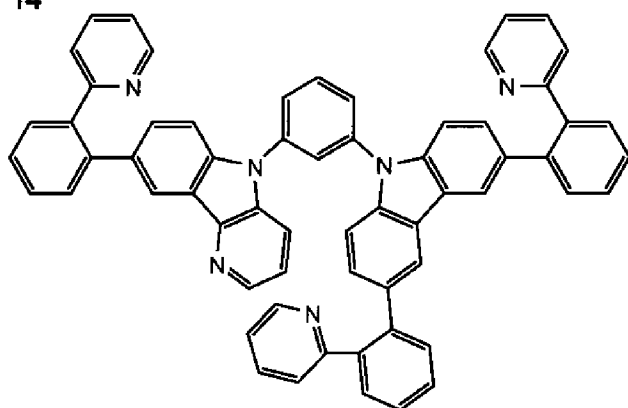
12



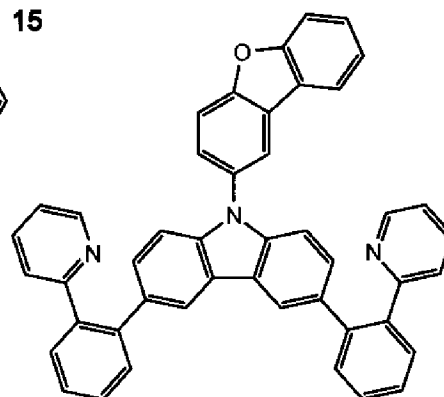
13



14

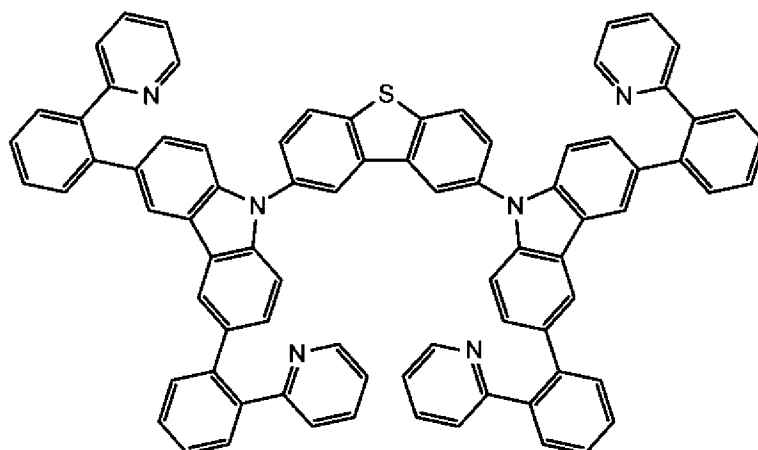


15

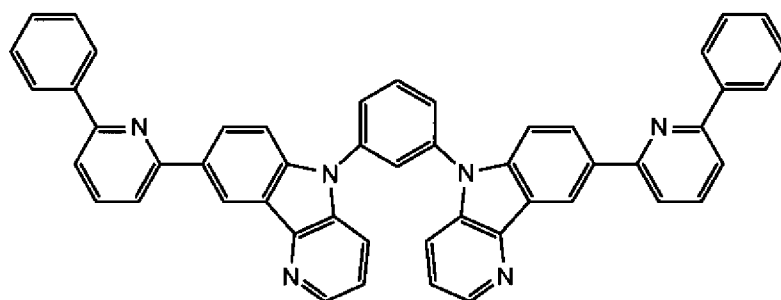


[0224] [化38]

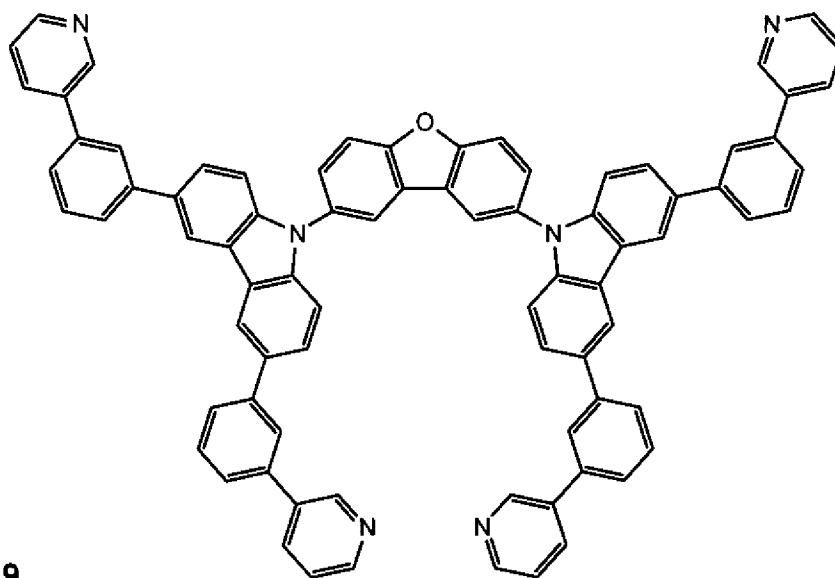
16



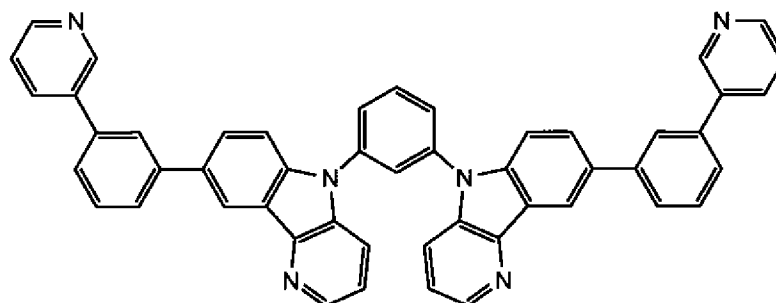
17



18

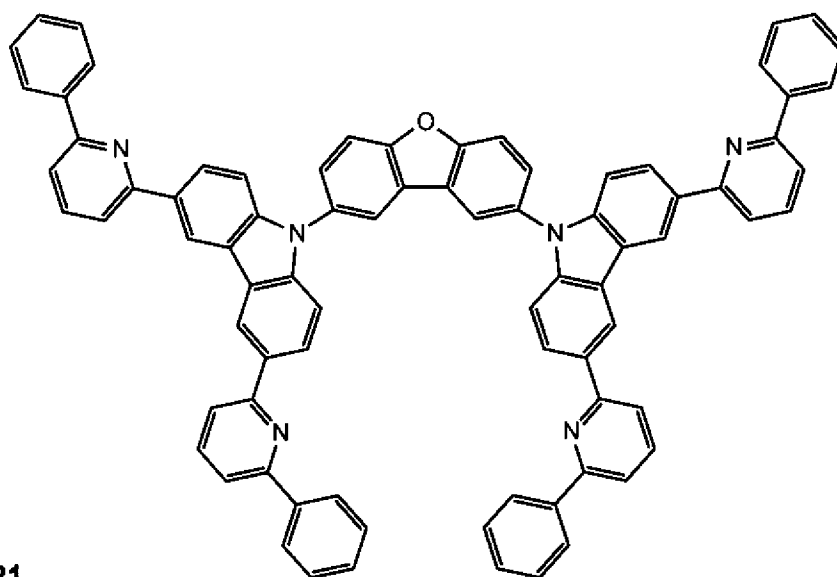


19

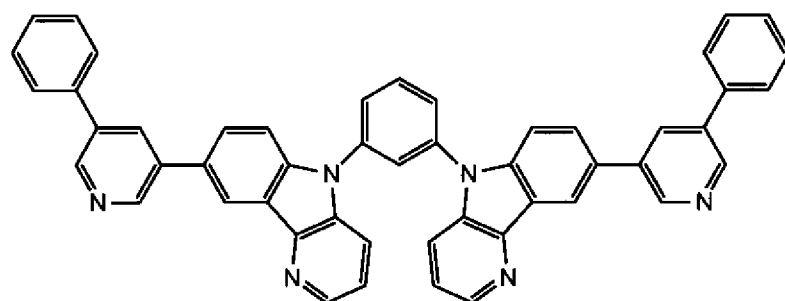


[0225] [化39]

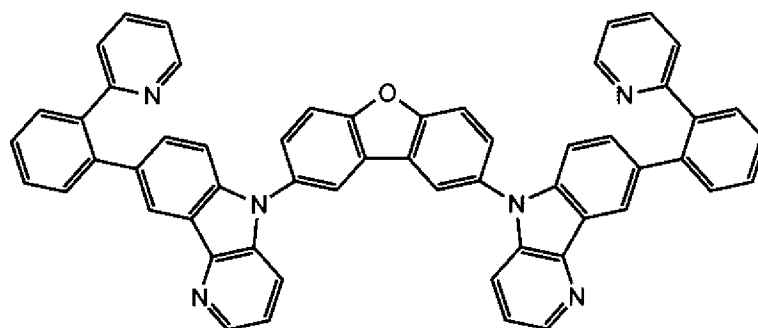
20



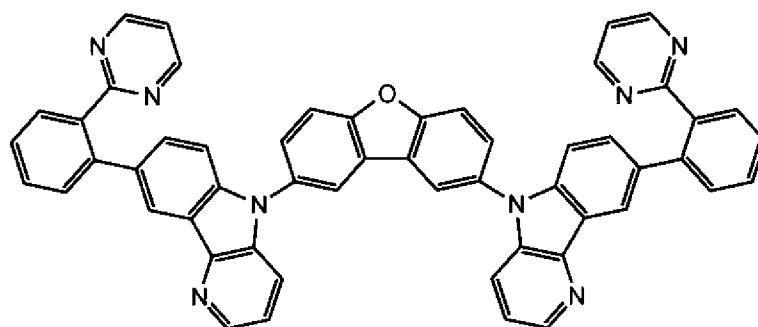
21



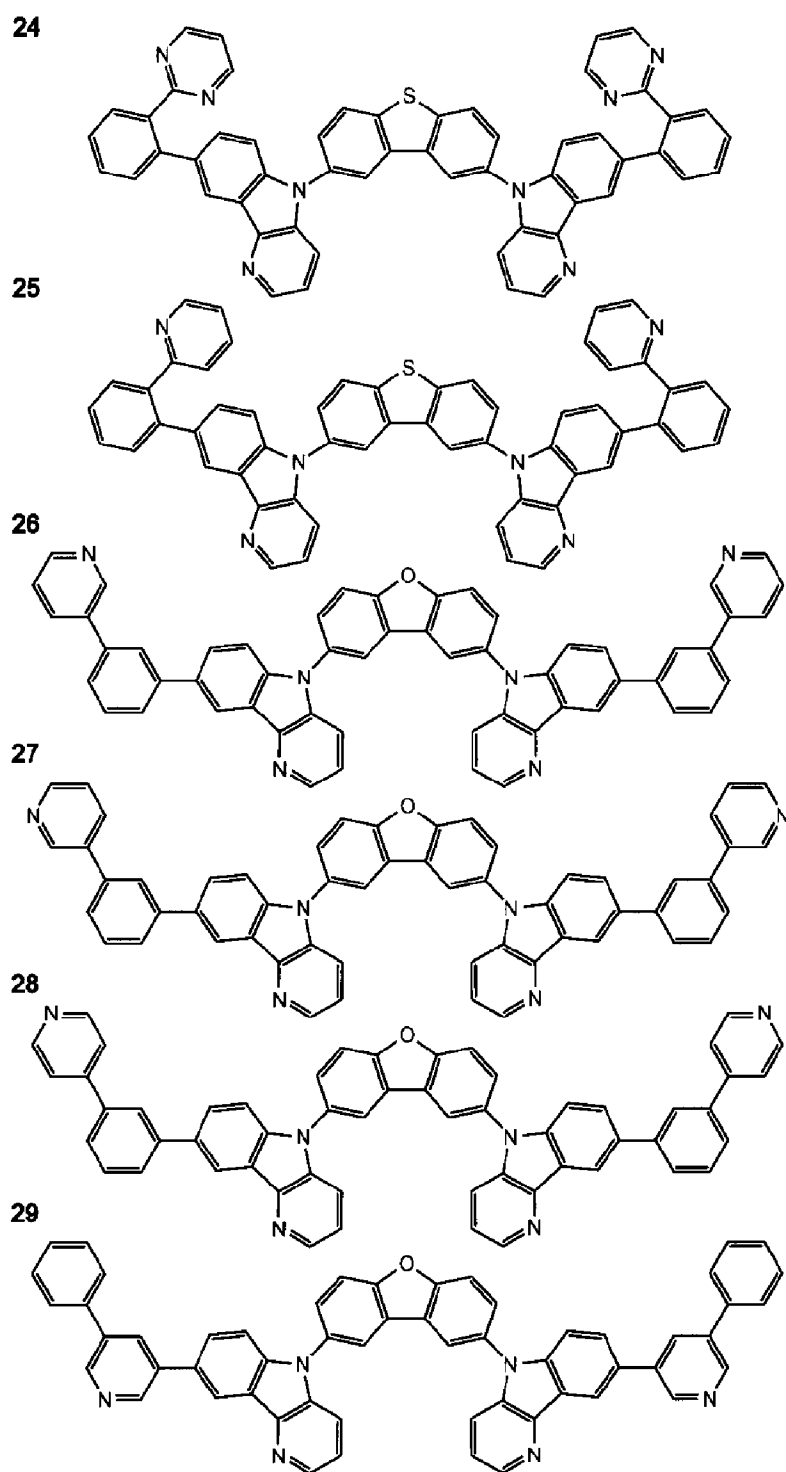
22



23

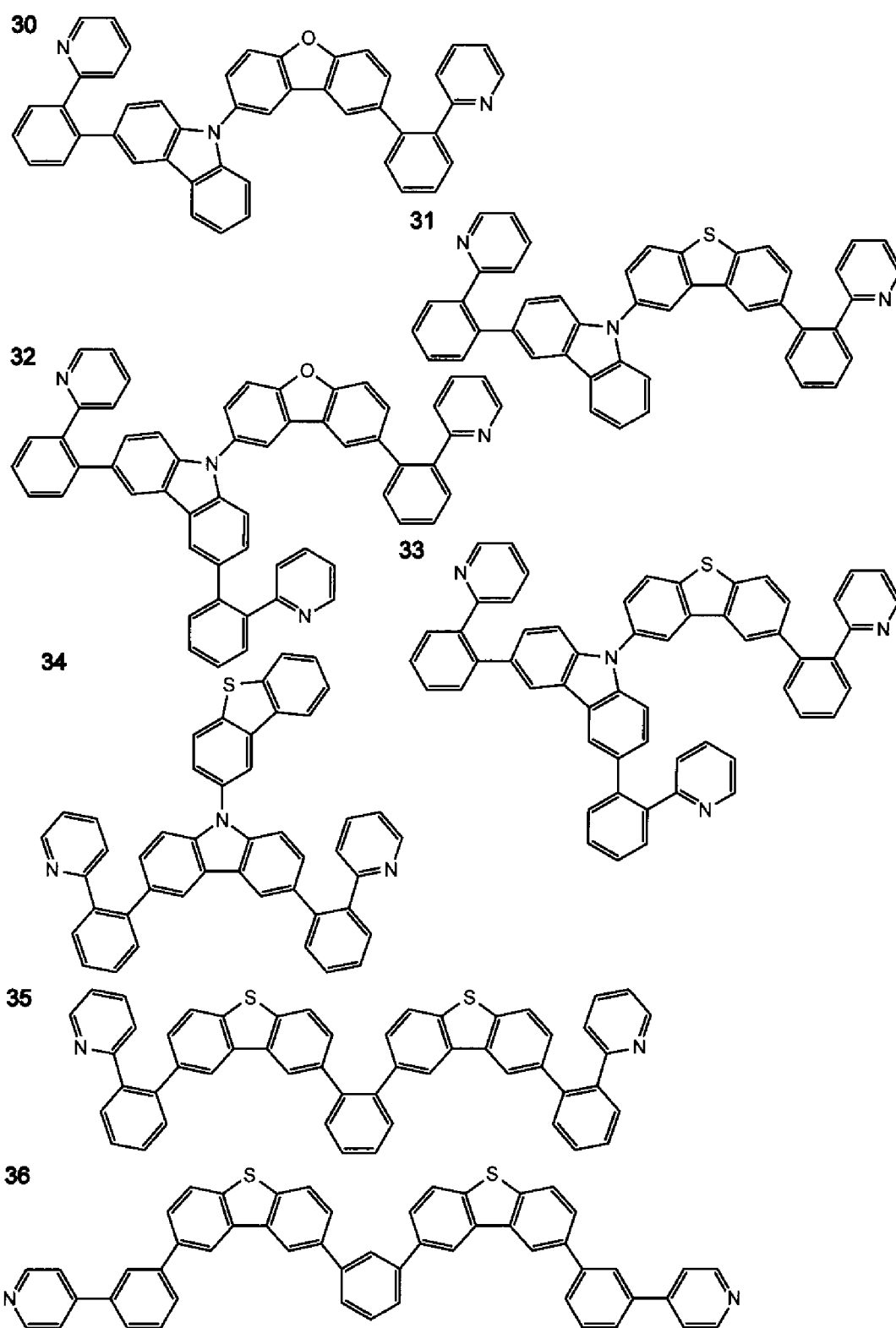


[0226] [化40]

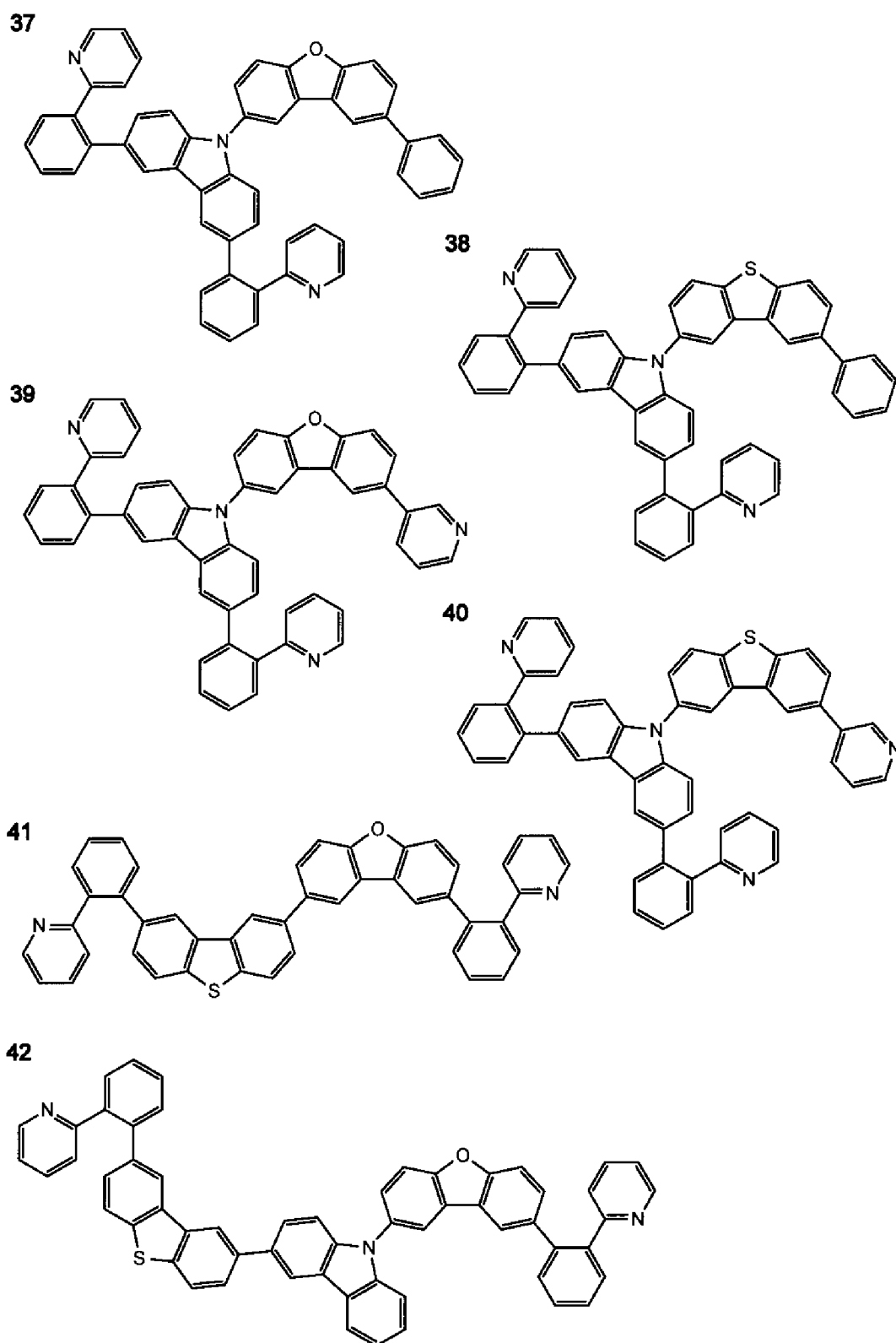


[0227]

[化41]

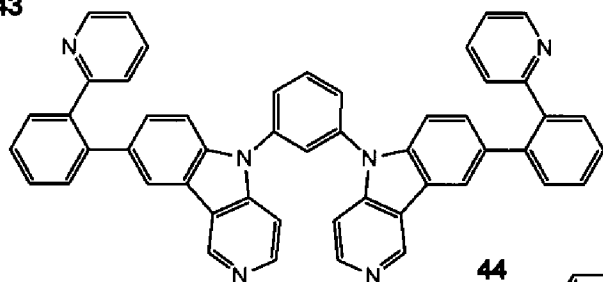


[0228] [化42]

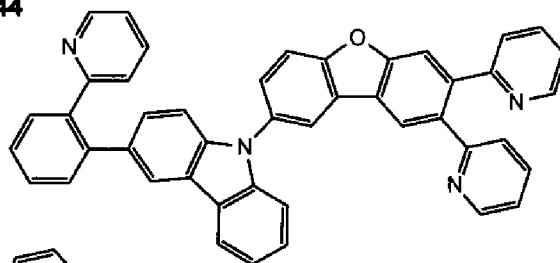


[0229] [化43]

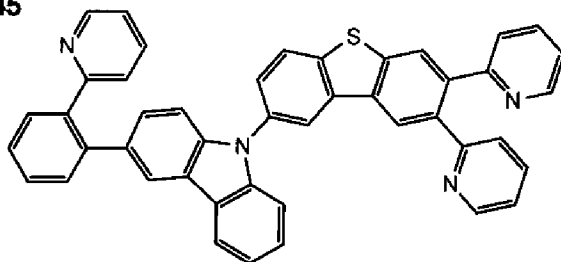
43



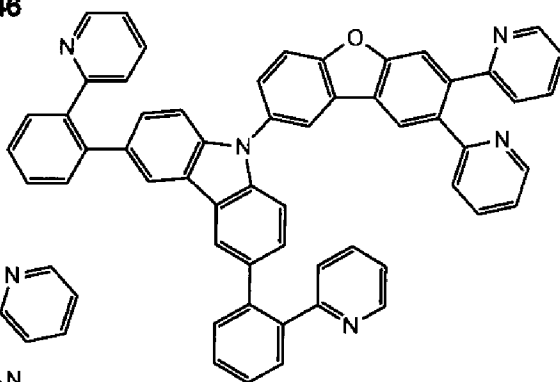
44



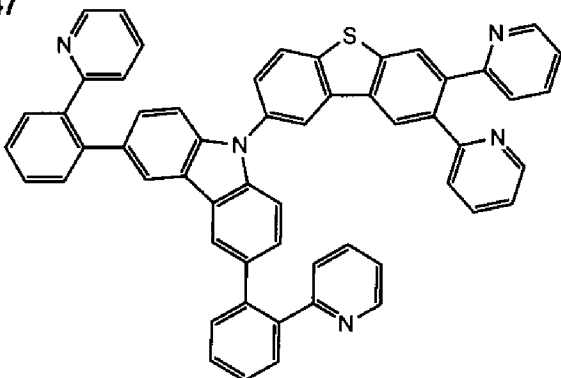
45



46

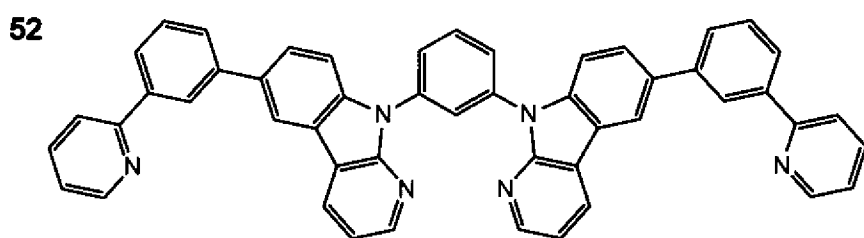
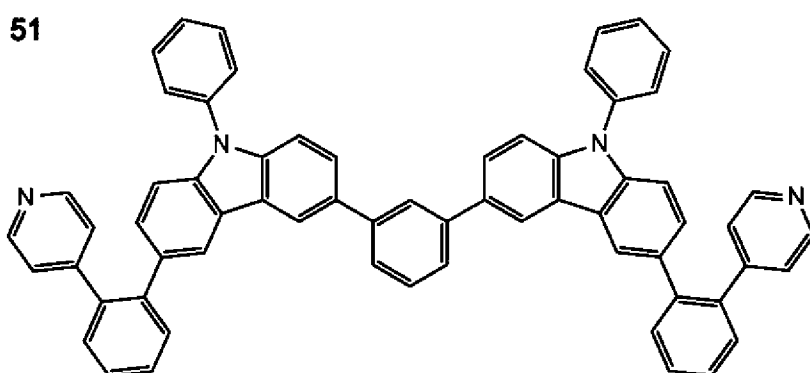
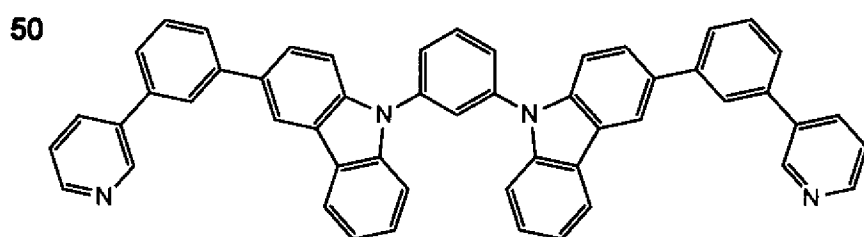
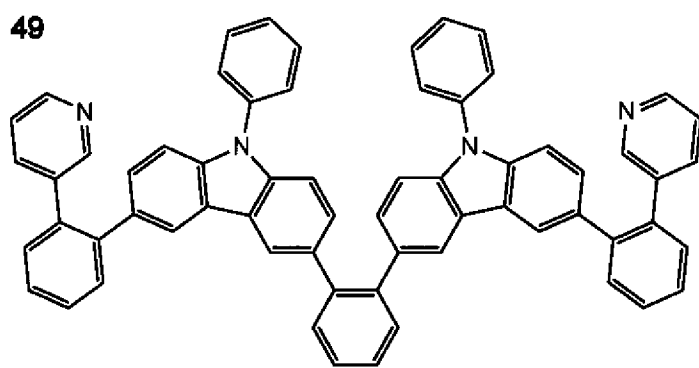
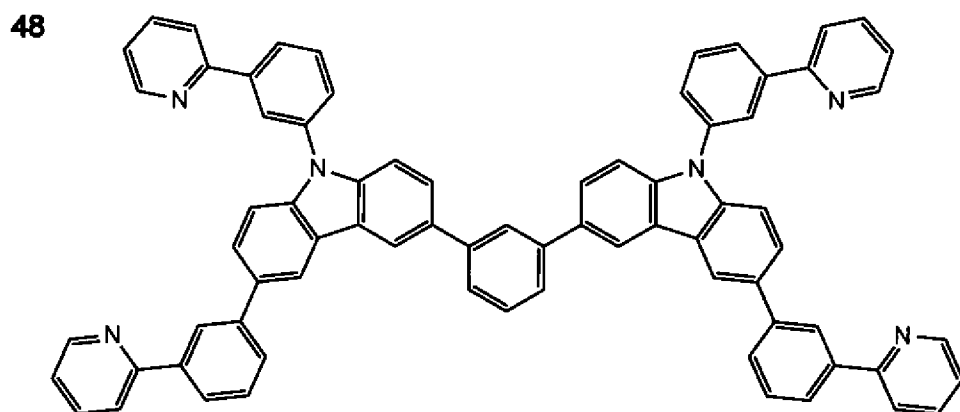


47



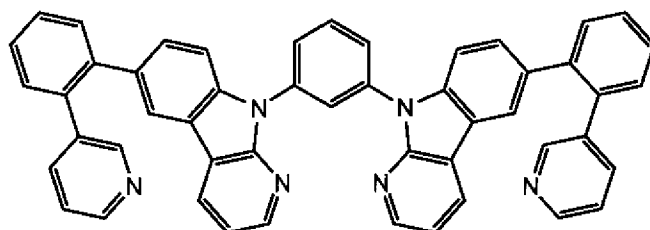
[0230]

[化44]

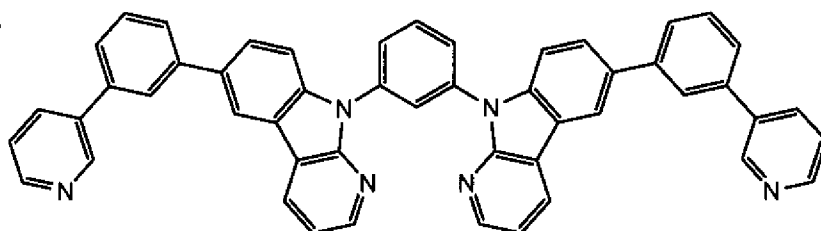


[0231] [化45]

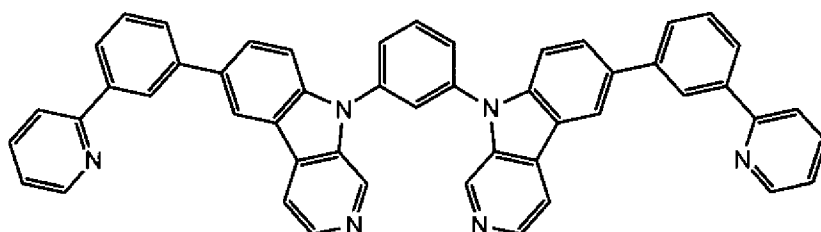
53



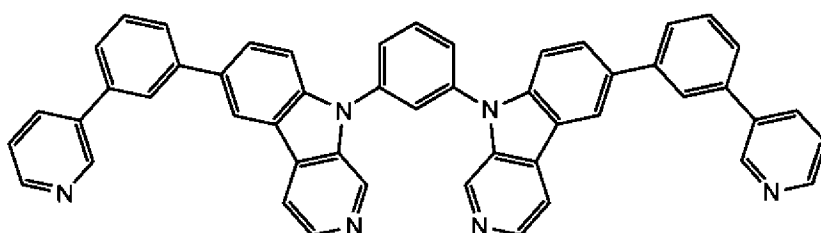
54



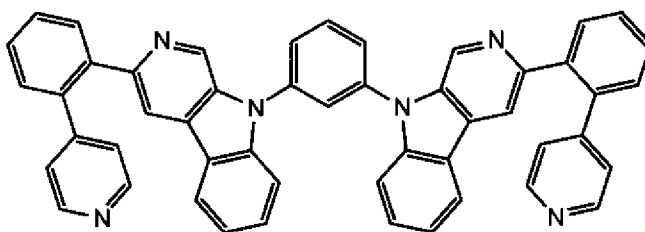
55



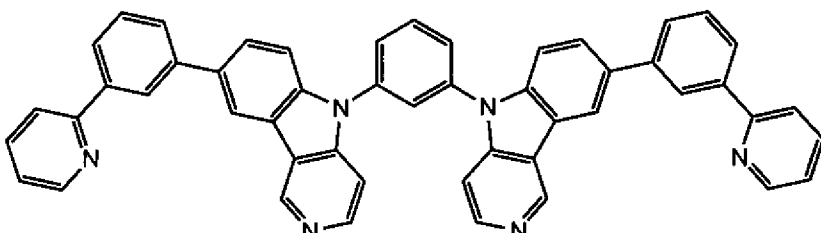
56



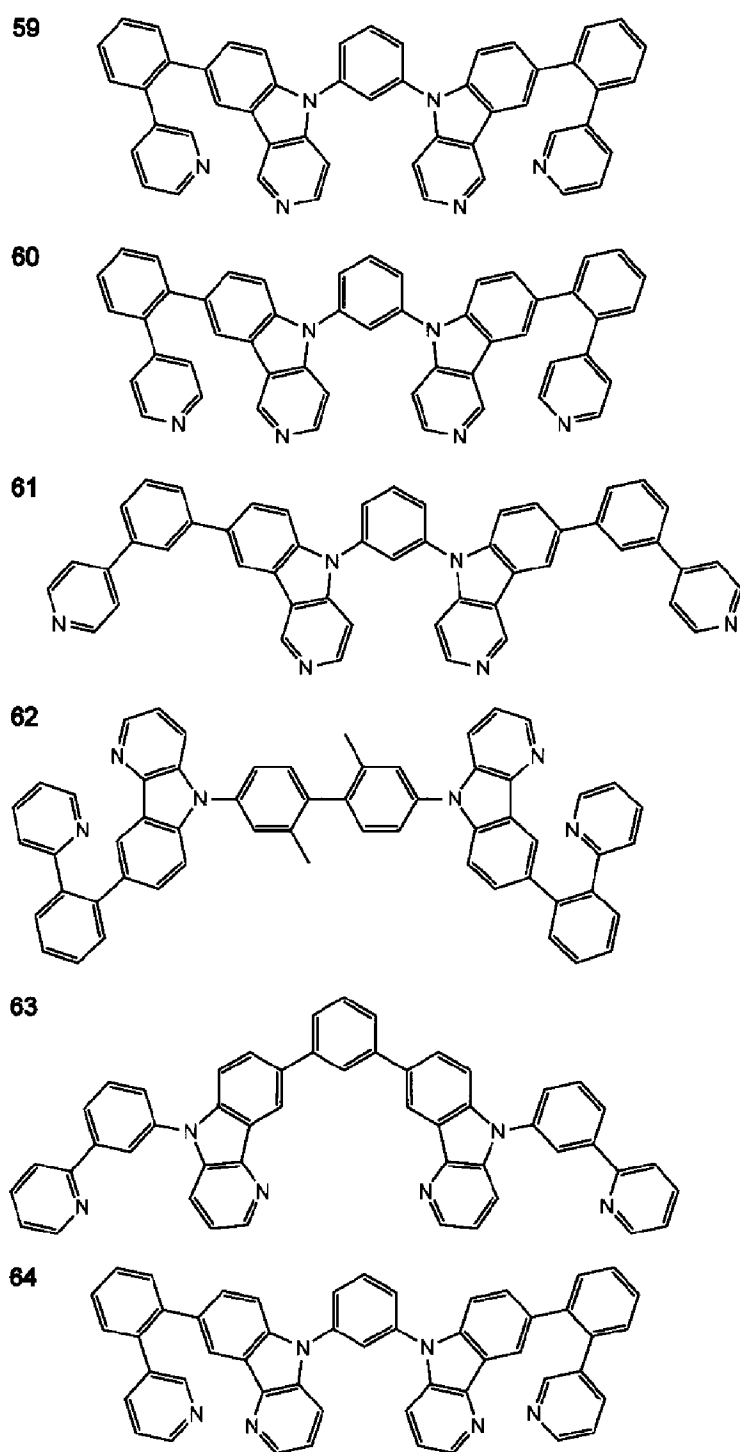
57



58

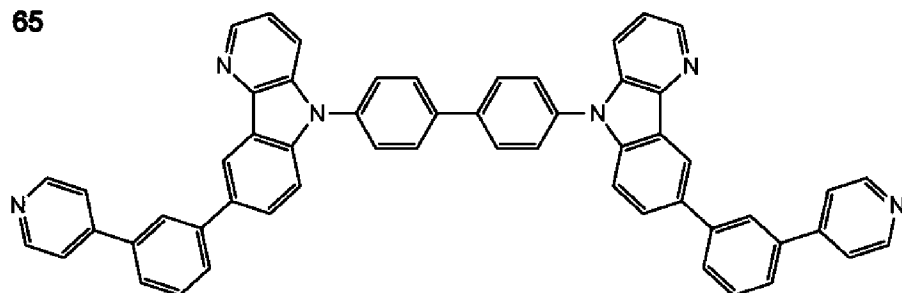
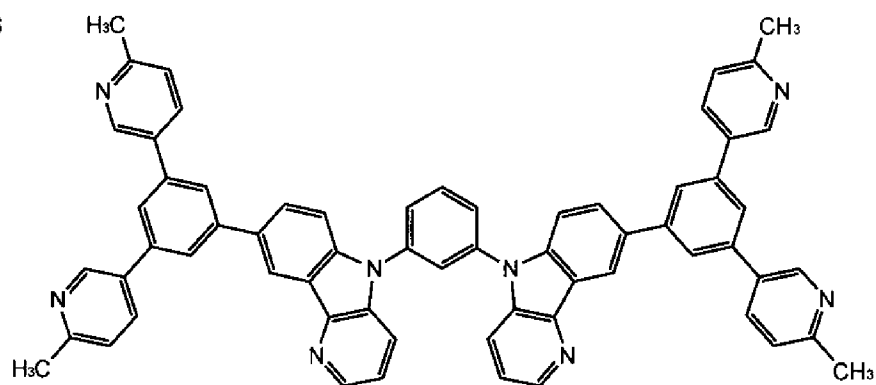
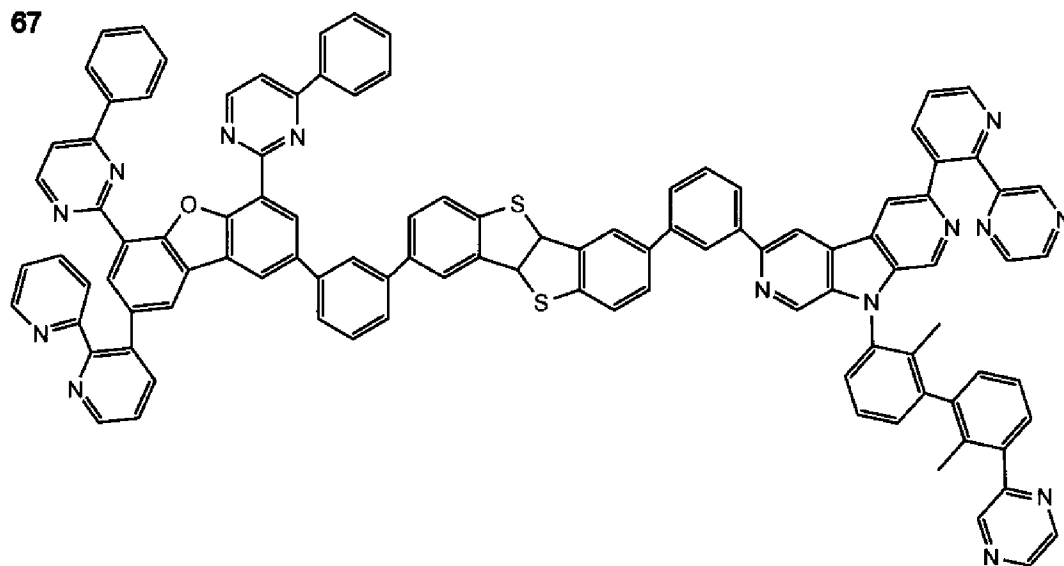


[0232] [化46]



[0233]

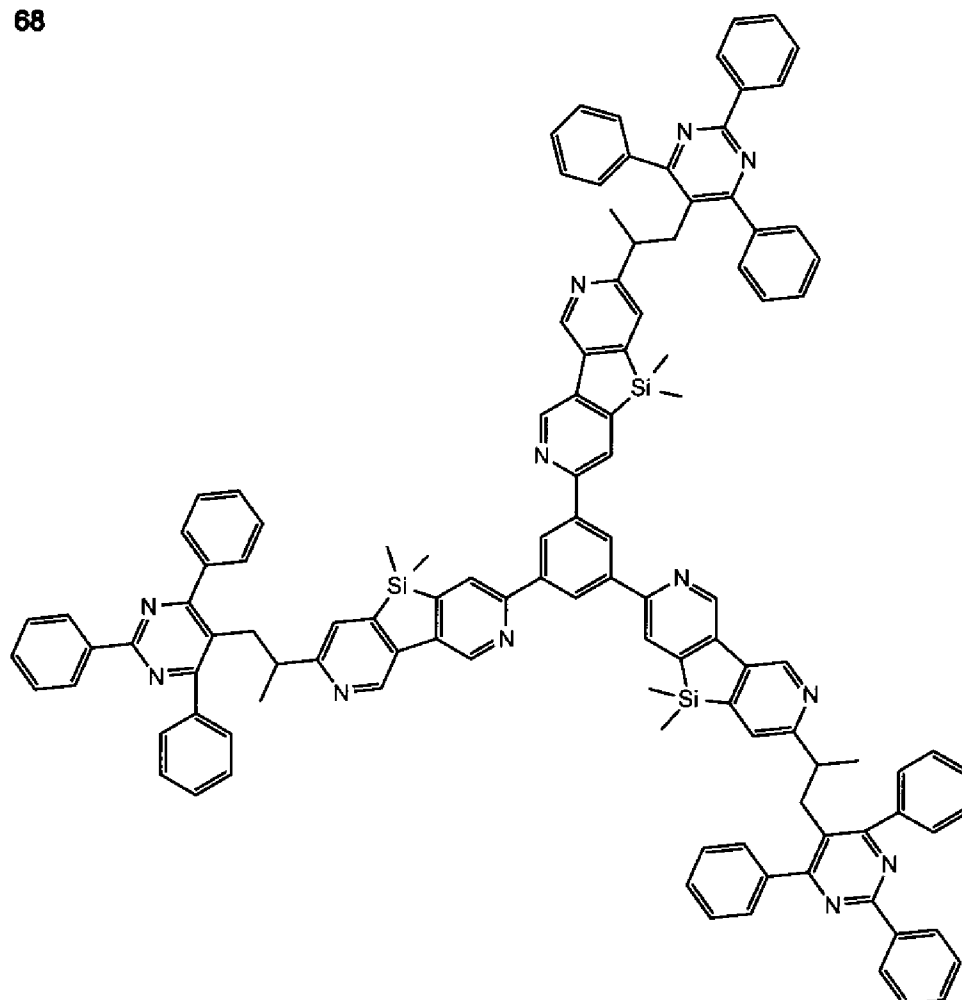
[化47]

65**66****67**

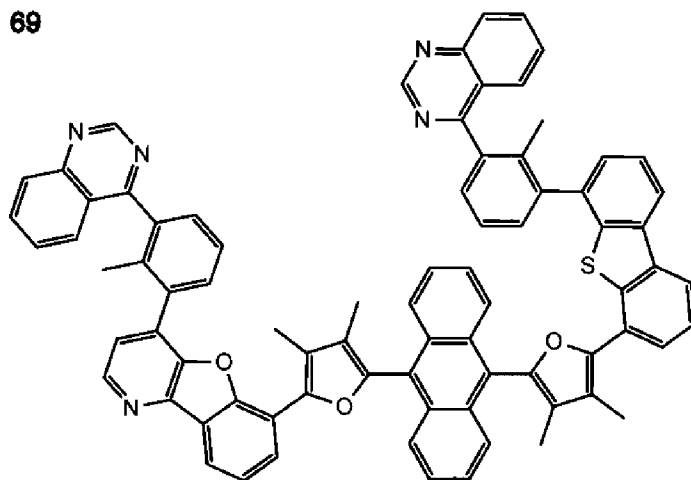
[0234]

[化48]

68



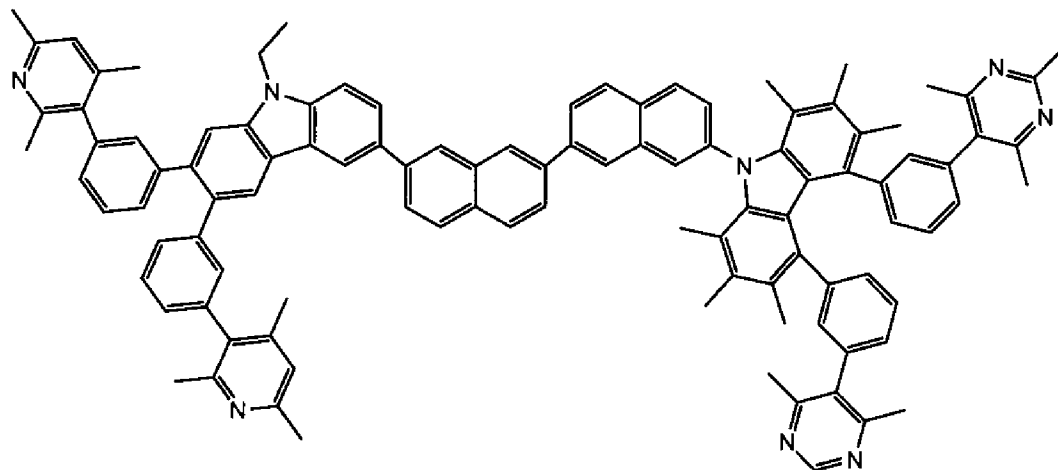
69



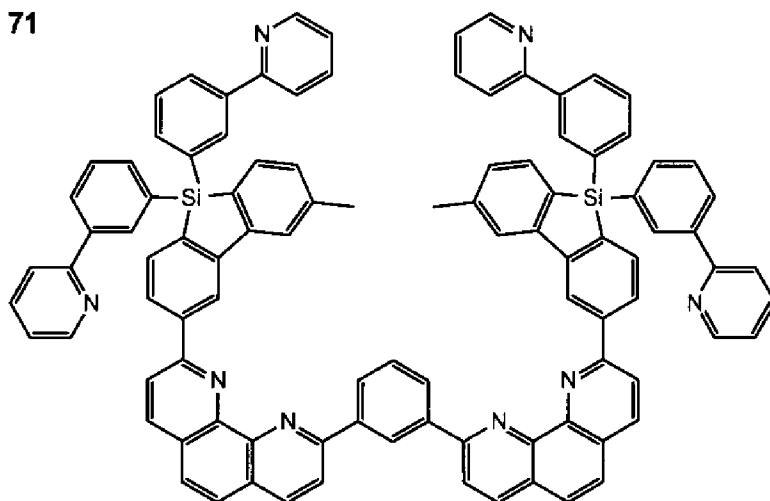
[0235]

[化49]

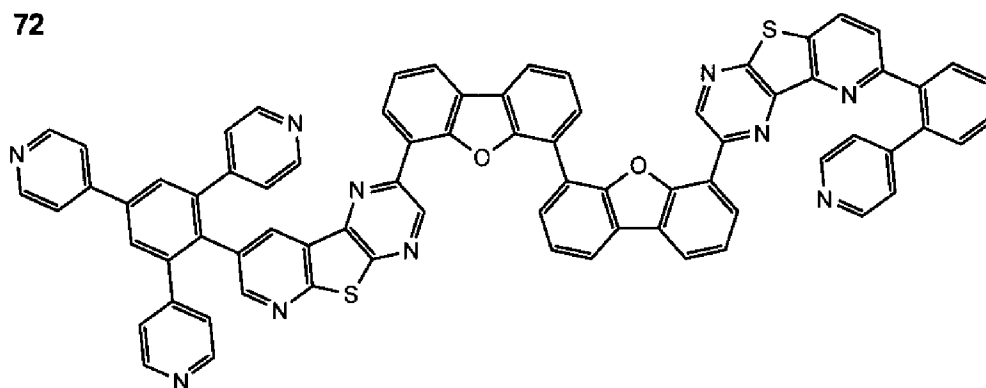
70



71



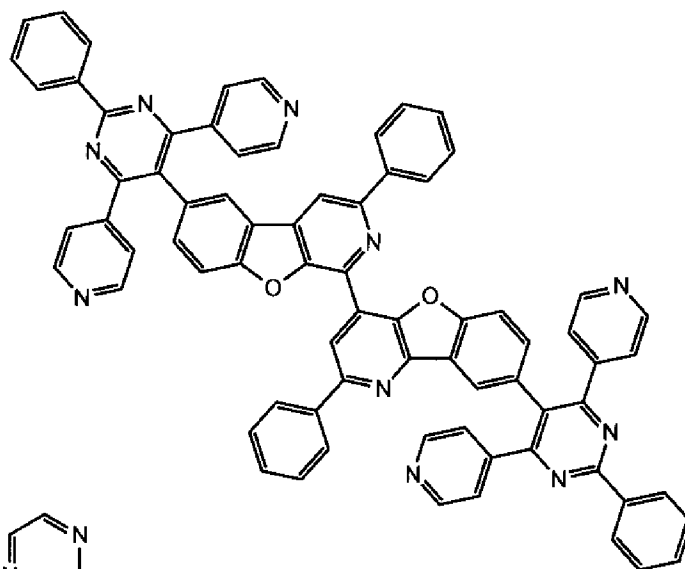
72



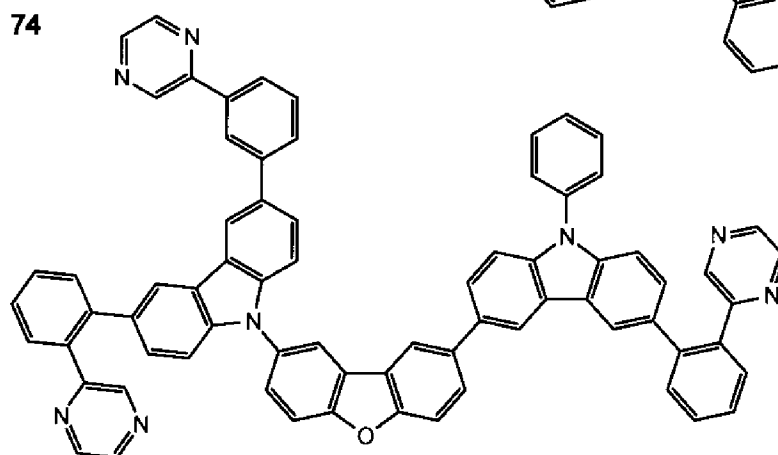
[0236]

[化50]

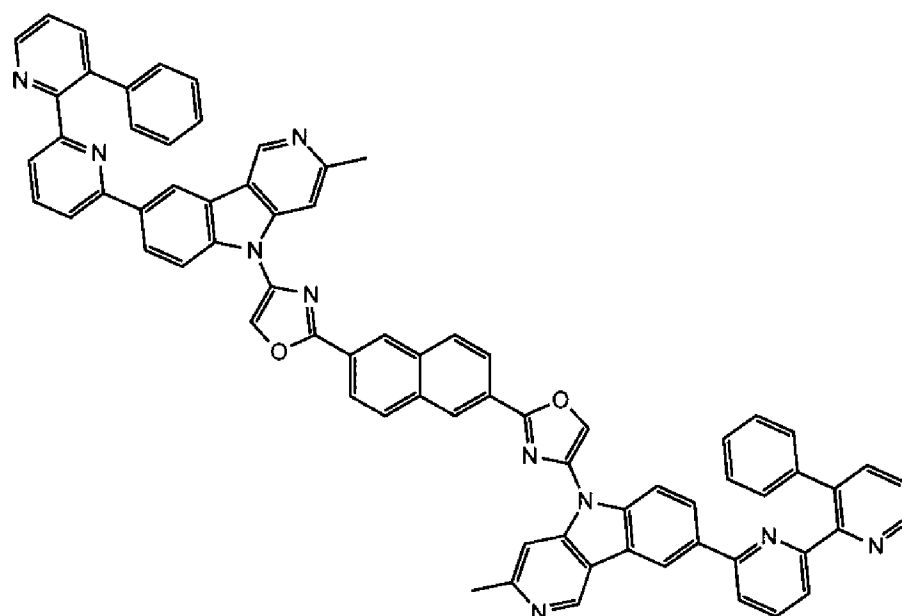
73



74

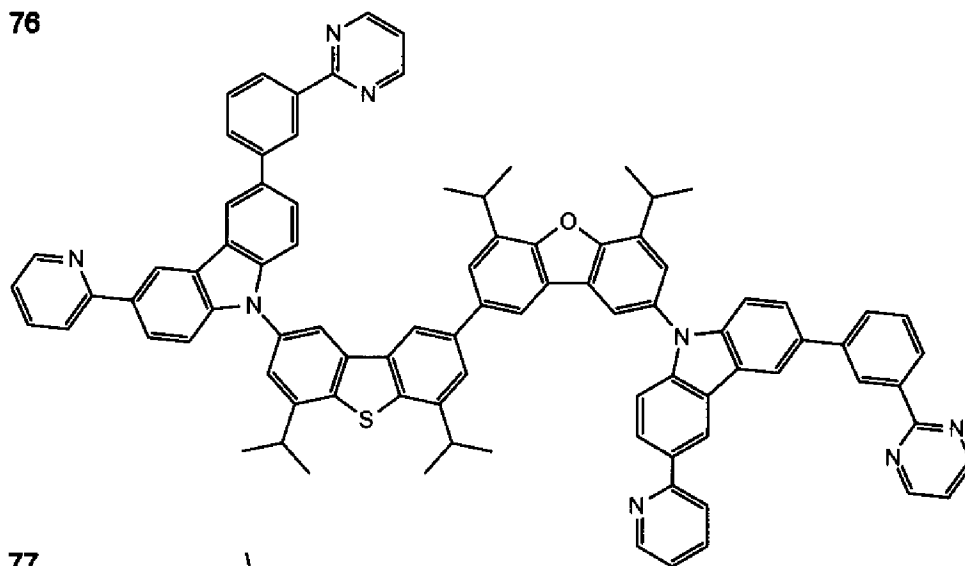


75

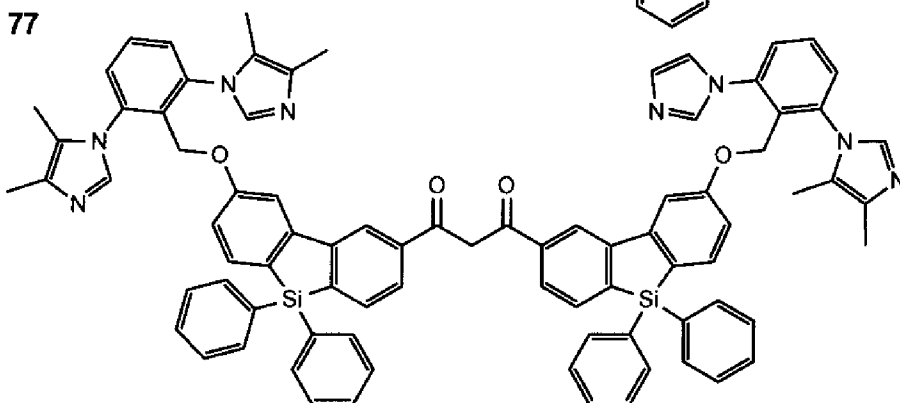


[0237] [化51]

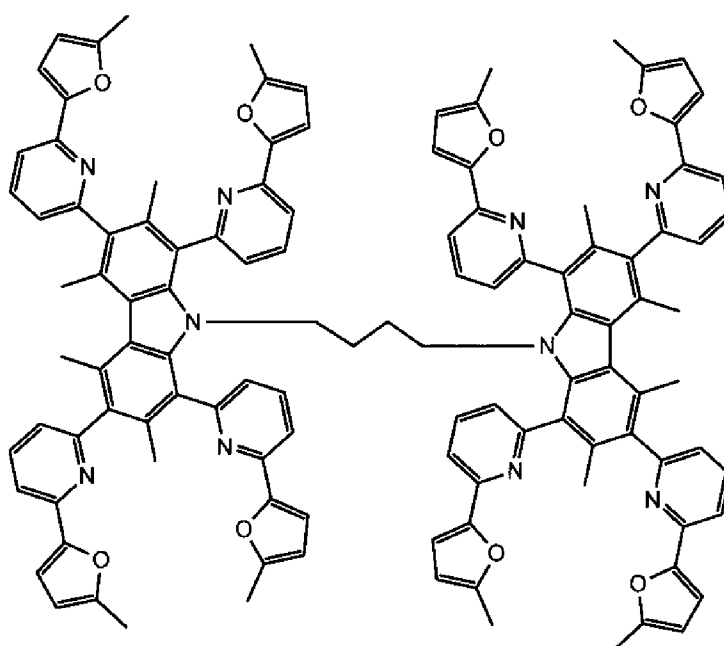
76



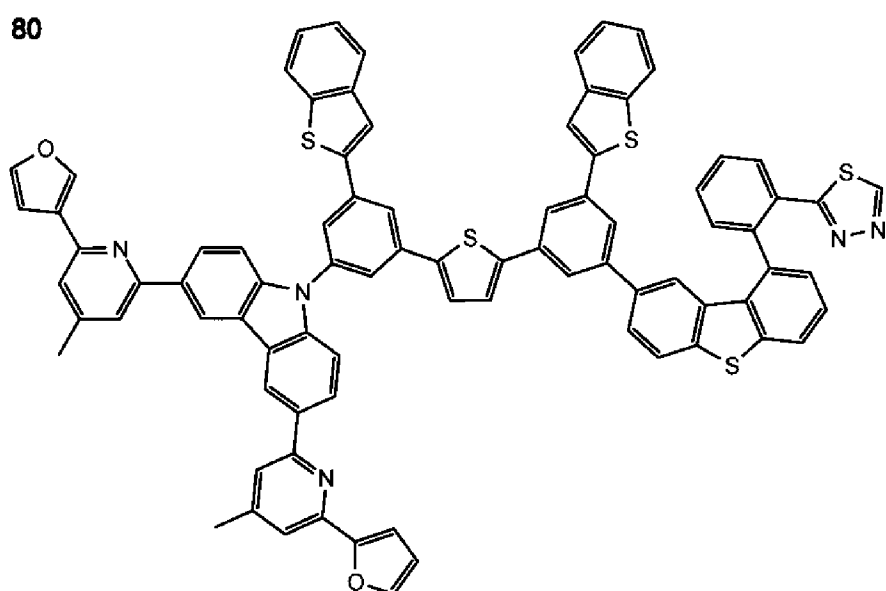
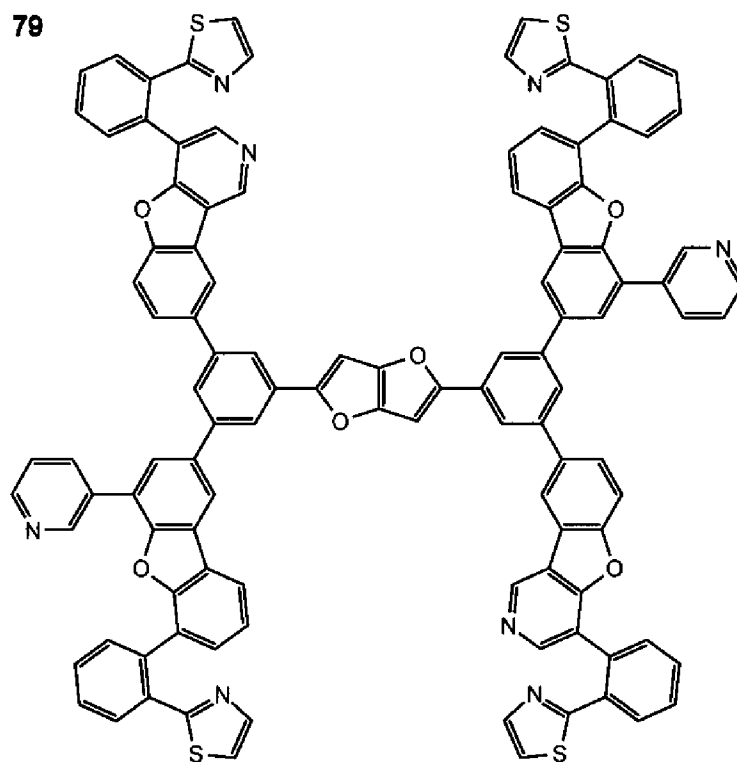
77



78



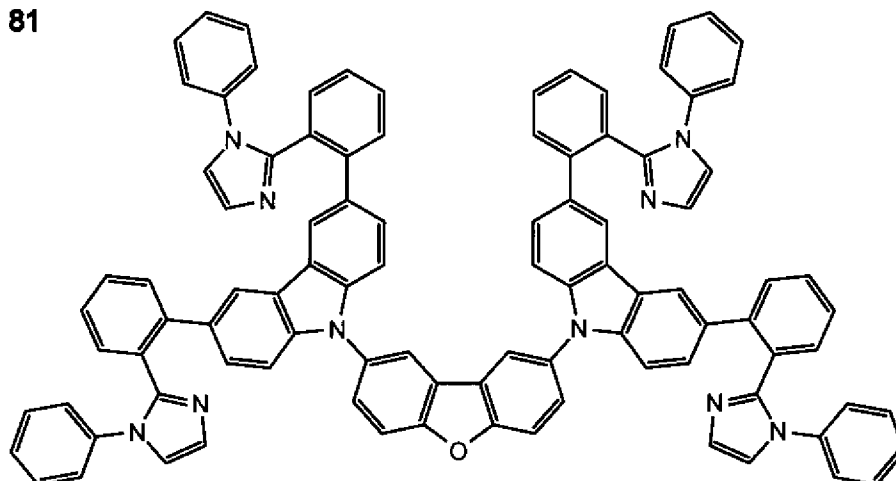
[0238] [化52]



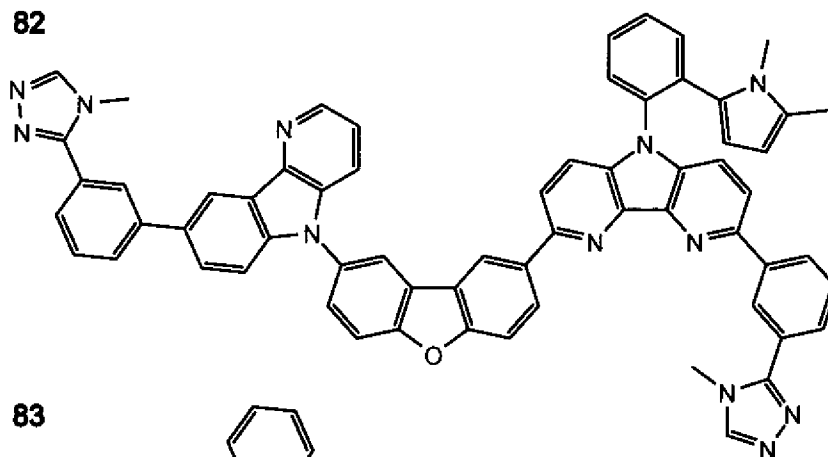
[0239]

[化53]

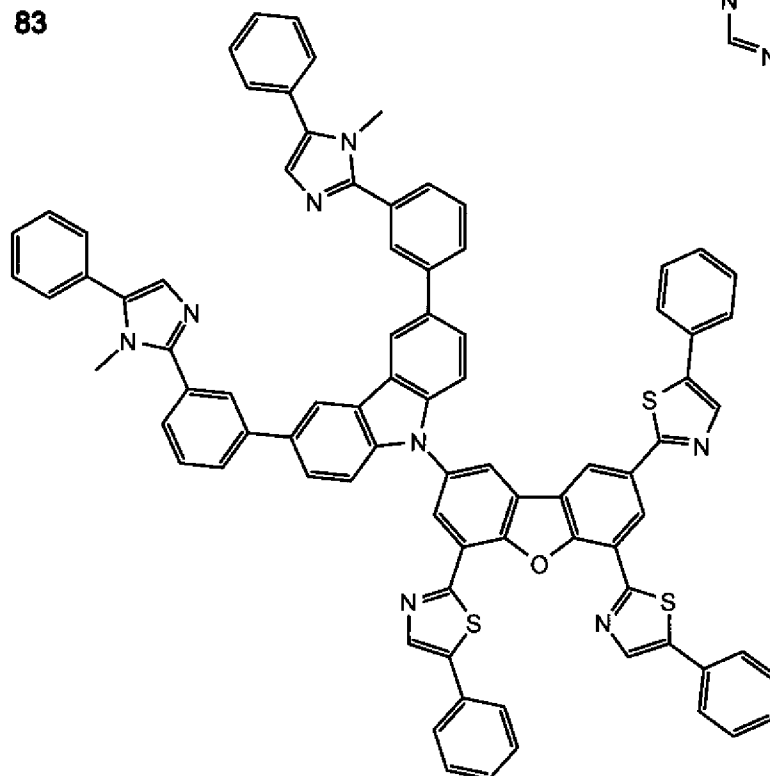
81



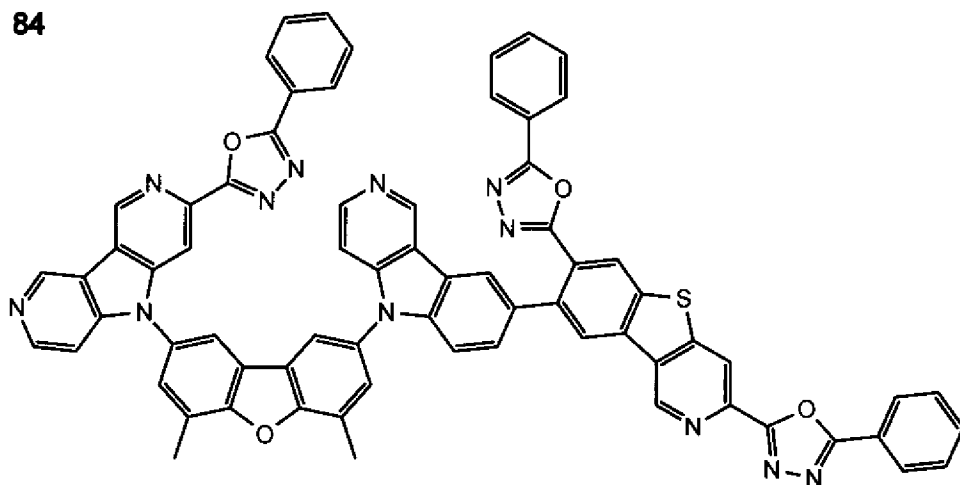
82



83

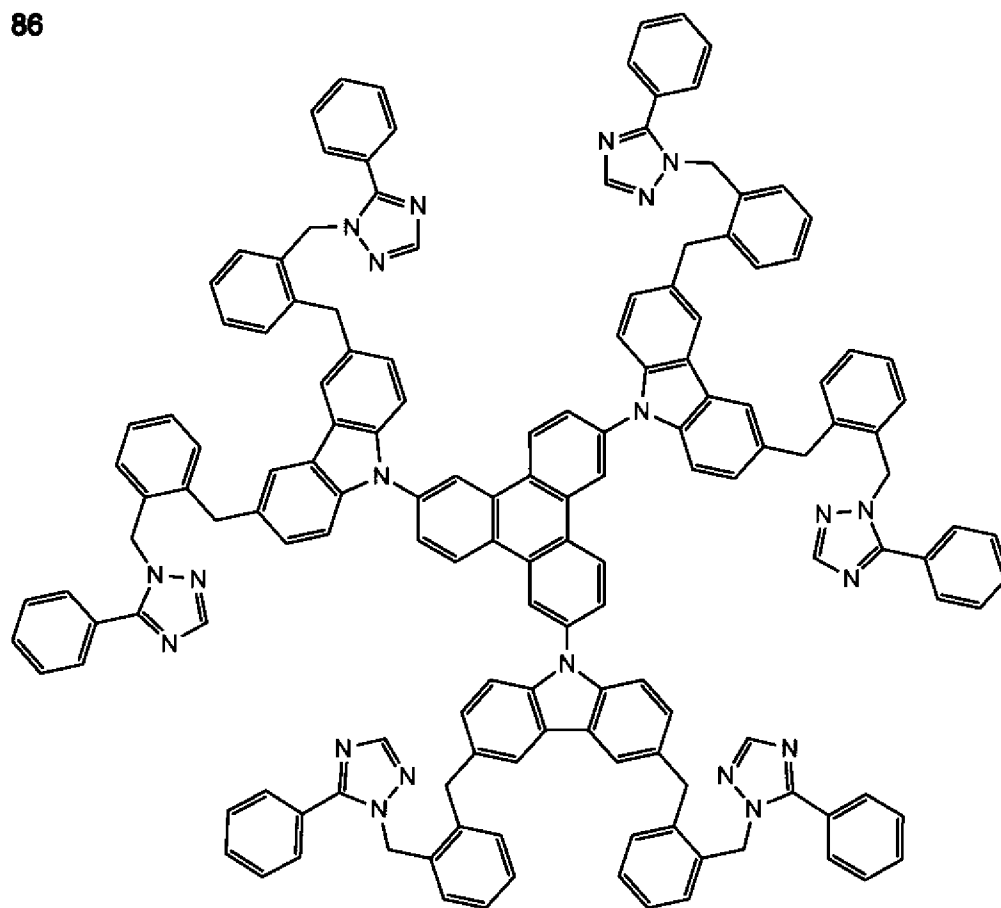


[0240] [化54]

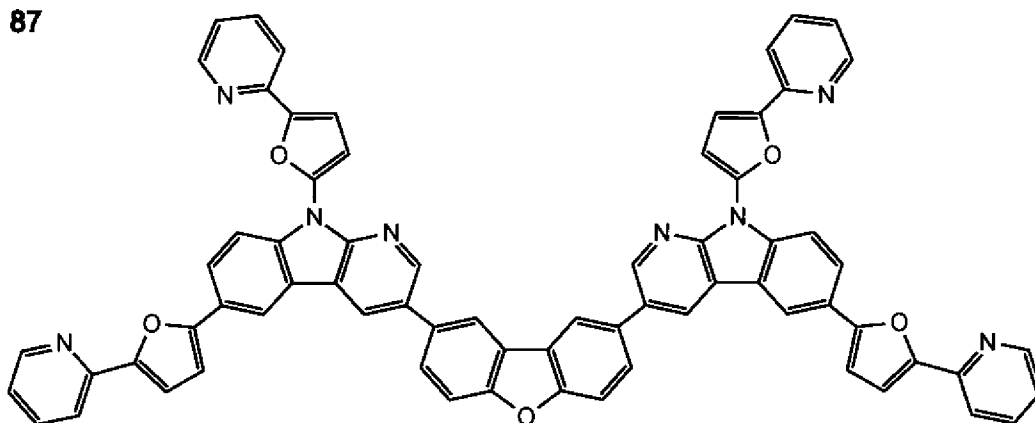
84

[化55]

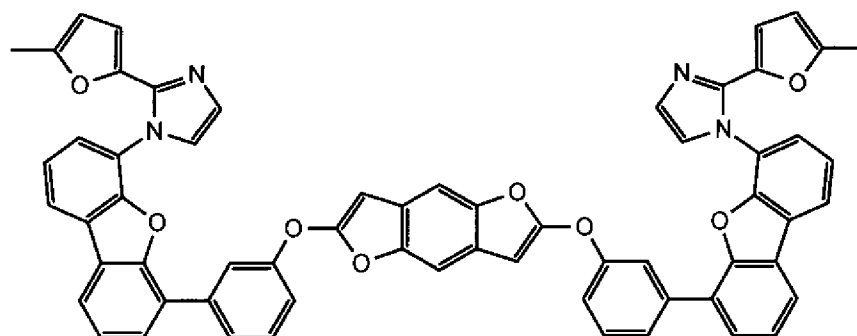
86



87

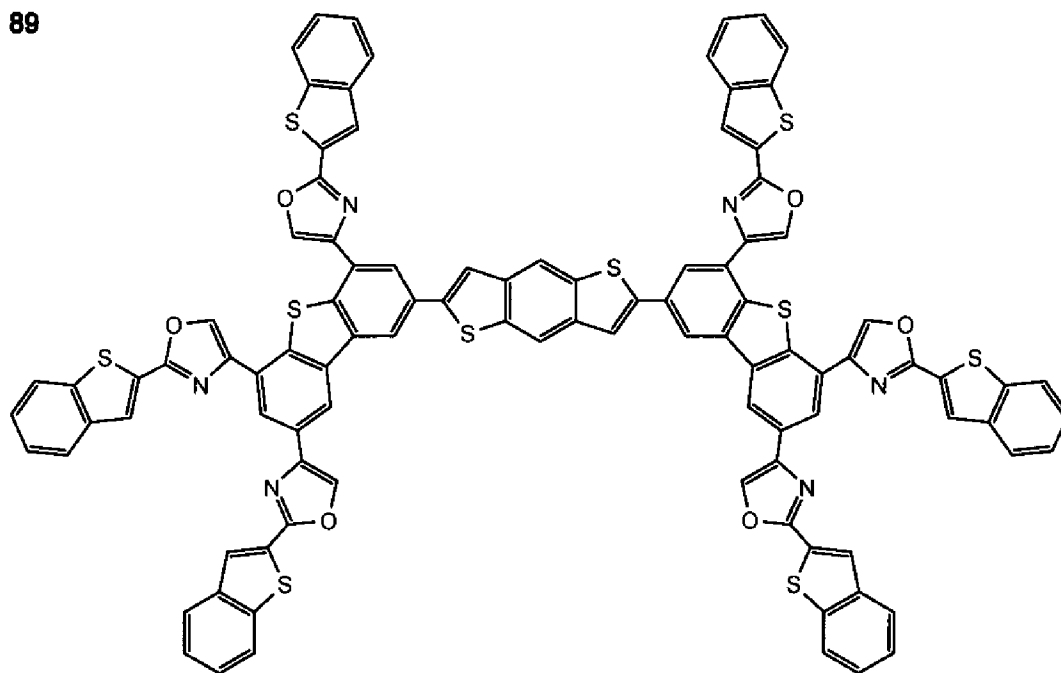


88

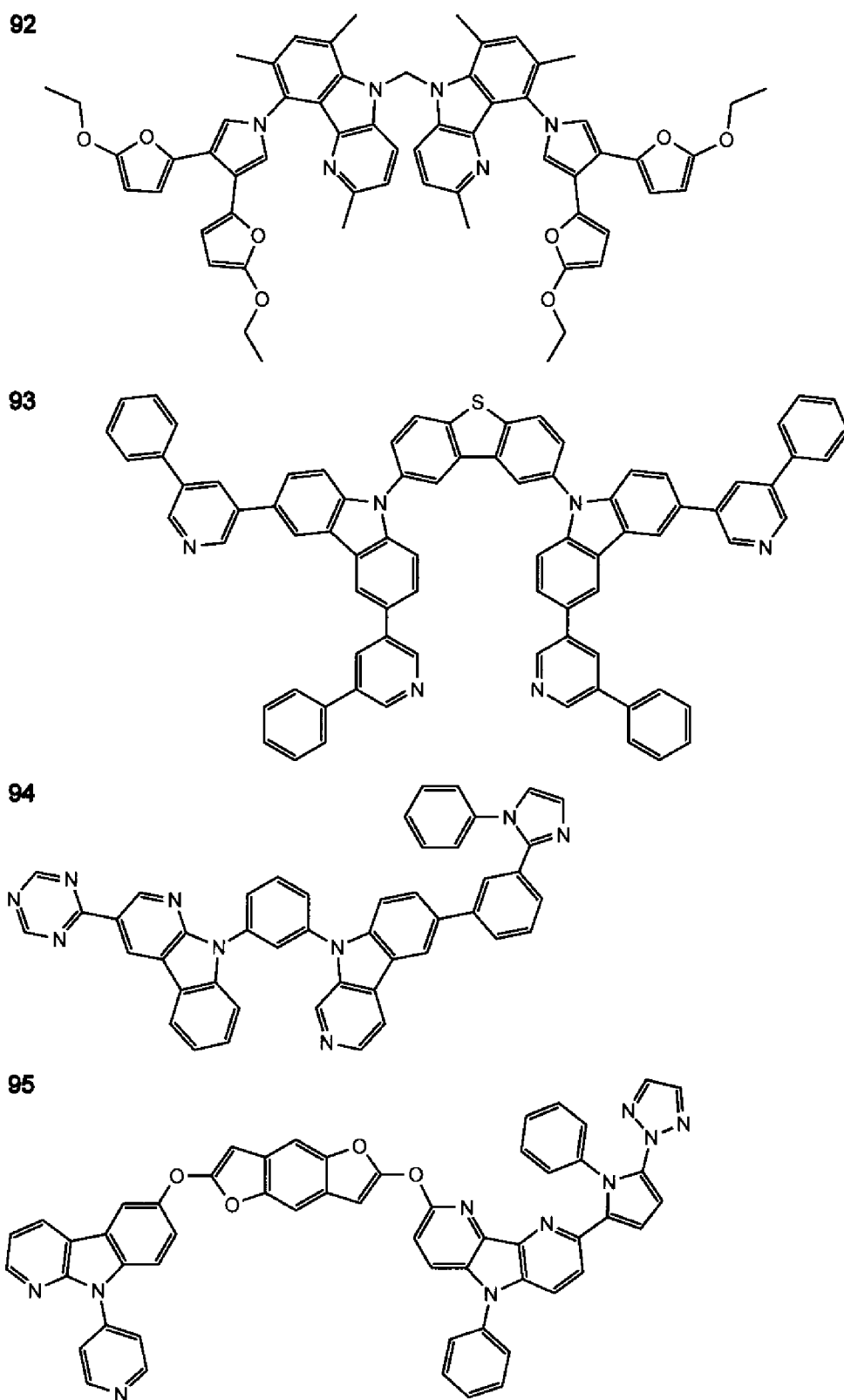


[0242] [化56]

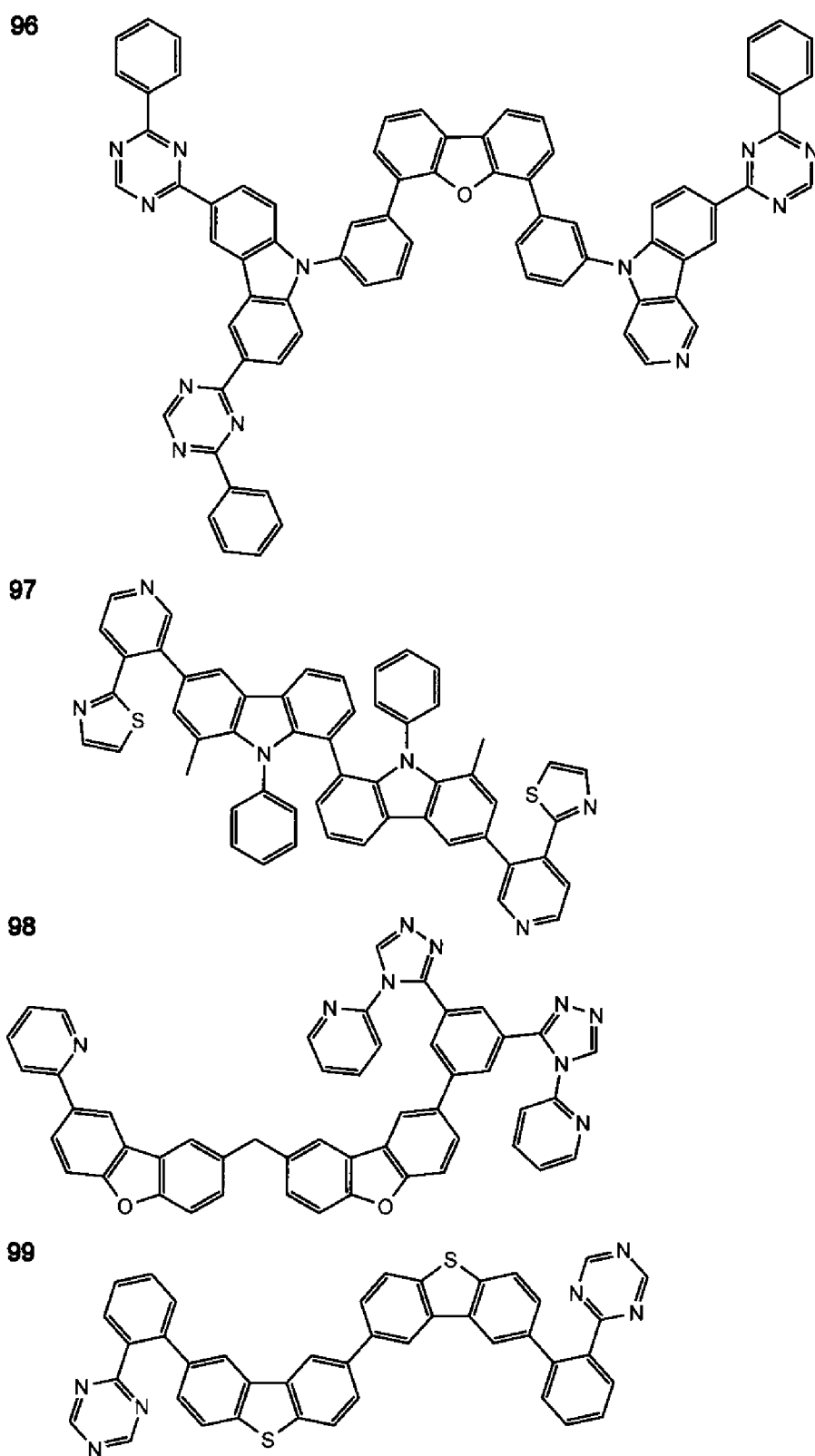
89



[0243] [化57]

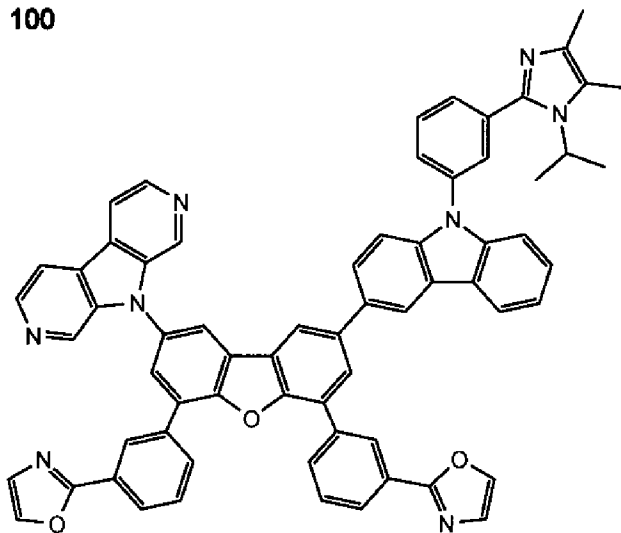


[0244] [化58]

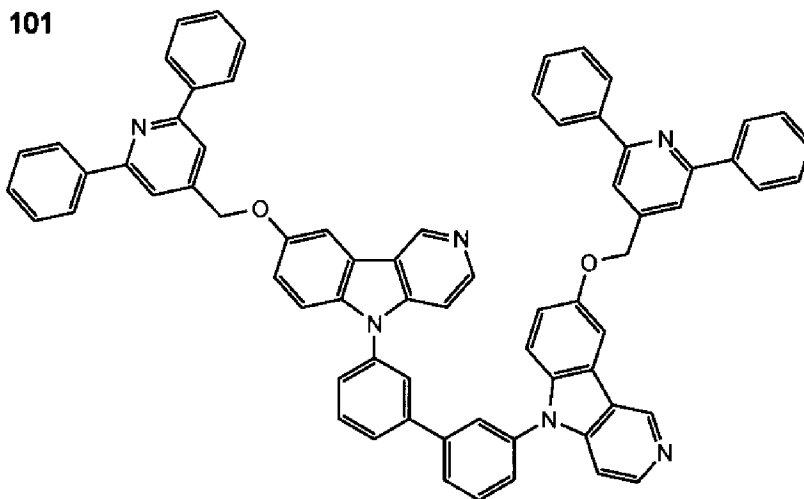


[0245] [化59]

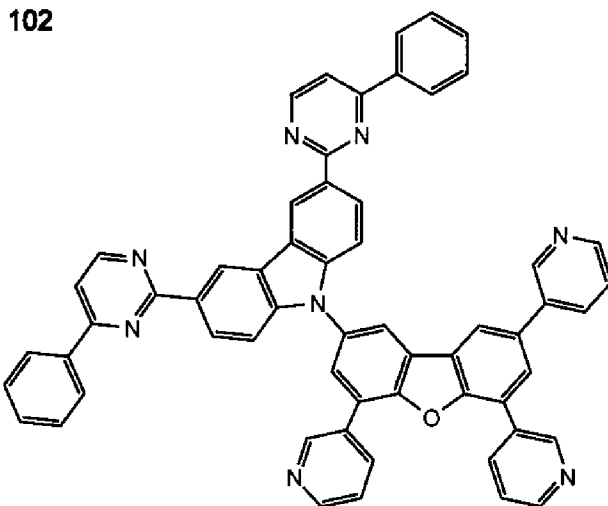
100



101

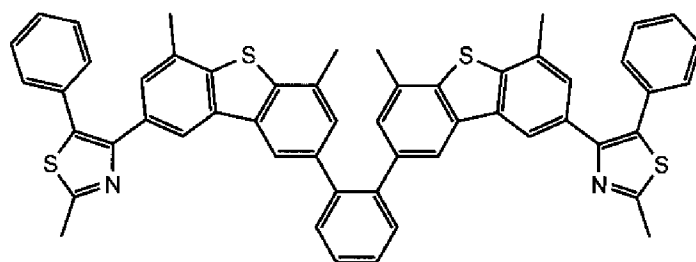


102

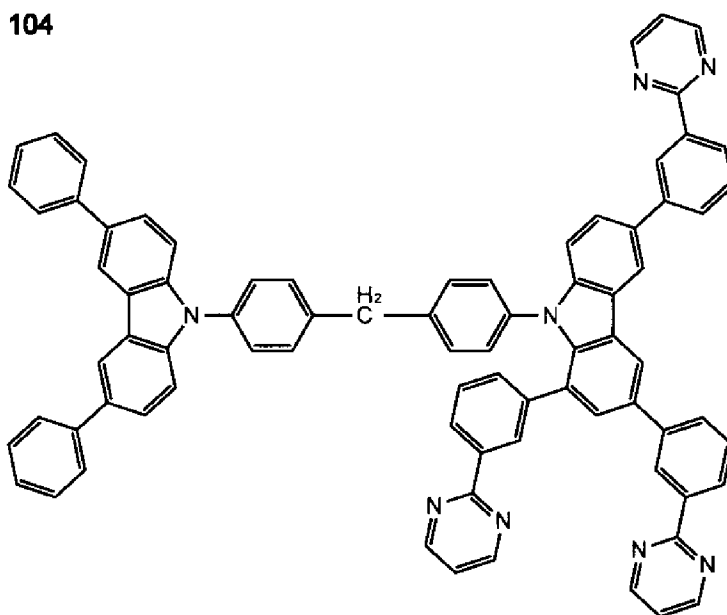


[0246] [化60]

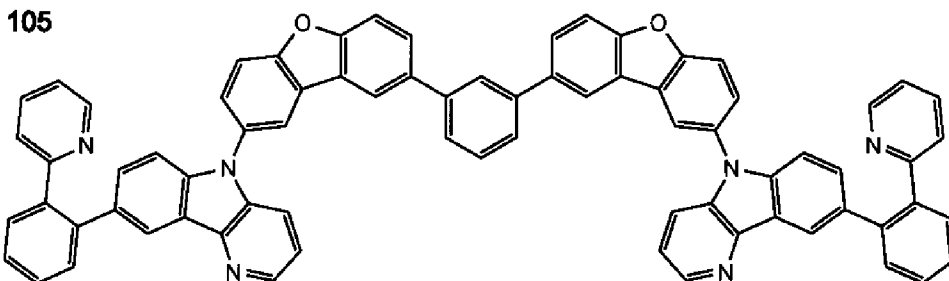
103



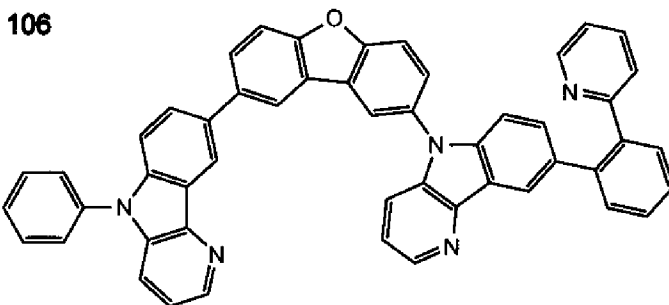
104



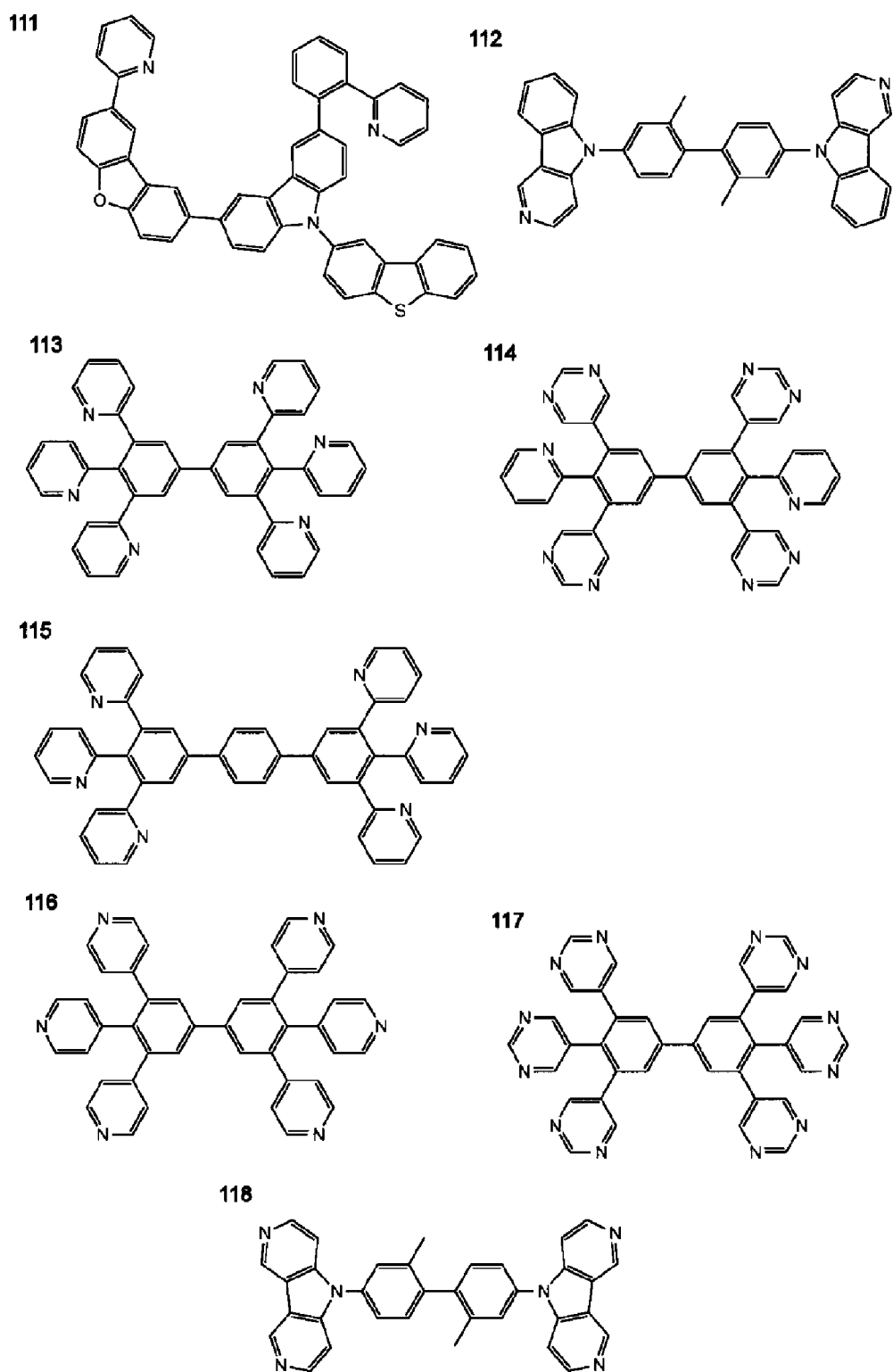
105



106



[0248] [化62]



[0249] [阻止層：正孔阻止層、電子阻止層]

阻止層は、上述のように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。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。

[0250] 正孔阻止層とは、広い意味では、電子輸送層 32d の機能を有する。正孔阻止層は、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、後述する電子輸送層 32d の構成を必要に応じて、正孔阻止層として用いることができる。正孔阻止層は、発光層 32c に隣接して設けられていることが好ましい。

[0251] 一方、電子阻止層とは、広い意味では、正孔輸送層 32b の機能を有する。電子阻止層は、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が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 32b 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。阻止層の厚さとしては、好ましくは 3～100 nm であり、さらに好ましくは 5～30 nm である。

[0252] [補助電極]

補助電極は、透明電極 20 の抵抗を下げる目的で設けられ、透明電極 20 の導電層 13 に接して設けられる。補助電極を形成する材料は、金、白金、銀、銅、アルミニウム等の抵抗が低い金属が好ましい。これらの金属は光透過性が低いため、光取り出し面からの発光光 h の取り出しの影響のない範囲でパターン形成される。このような補助電極の形成方法としては、蒸着法、スパッタリング法、印刷法、インクジェット法、エアロゾルジェット法などが挙げられる。補助電極の線幅は、光を取り出す開口率の観点から 50 μm 以下であることが好ましく、補助電極の厚さは、導電性の観点から 1 μm 以上であることが好ましい。

[0253] [封止材]

封止材は、有機電界発光素子 30 を覆うものであって、板状（フィルム状）の封止部材であって接着剤によって透明基板 31 側に固定されていてもよく、封止層であってもよい。この封止材は、有機電界発光素子 30 における透明電極 20 及び対向電極 33 の端子部分を露出させる状態で、少なくとも発光機能層 32 を覆う状態で設けられている。また封止材に電極を設け、有機電界発光素子 30 の透明電極 20 及び対向電極 33 の端子部分と、この電極とを導通させるように構成されていてもよい。

[0254] 板状（フィルム状）の封止材としては、具体的には、ガラス基板、ポリマー基板が挙げられ、これらの基板材料をさらに薄型のフィルム状にして用いてもよい。ガラス基板としては、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、ポリマー基板としては、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。

[0255] なかでも、素子を薄型化できるということから、封止材として薄型のフィルム状にしたポリマー基板を好ましく使用することができる。

[0256] さらに、フィルム状としたポリマー基板は、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、 $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下であることが好ましい。

[0257] また、以上のような基板材料は、凹板状に加工して封止材として用いてもよい。この場合、上述した基板部材に対してサンドブラスト加工、化学エッチング加工等の加工が施され、凹状が形成される。

[0258] また、これに限らず、金属材料を用いてもよい。金属材料としては、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又は合金が挙げられる。このような金属材料は、薄型のフィルム状にして封止材として用いることにより、有機電界発光素子が設けられた発光パネル全体を薄型化できる。

[0259] また、このような板状の封止材を透明基板 31 側に固定するための接着剤は、封止材と透明基板 31 との間に挟持された有機電界発光素子 30 を封止するためのシール剤として用いられる。このような接着剤は、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。

[0260] また、このような接着剤としては、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。

[0261] なお、有機電界発光素子 30 を構成する有機材料は、熱処理により劣化する場合がある。このため、室温から 80℃までに接着硬化できる接着剤を使用することが好ましい。また、接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。

[0262] 封止材と透明基板 31 との接着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。

[0263] また、板状の封止材と透明基板 31 と接着剤との間に隙間が形成される場合、この隙間には、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。

[0264] 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。

[0265] 一方、封止材として封止層を用いる場合、有機電界発光素子 30 における発光機能層 32 を完全に覆い、かつ有機電界発光素子 30 における透明電極 20 及び対向電極 33 の端子部分を露出させる状態で、透明基板 31 上に封止層が設けられる。

[0266] このような封止層は、無機材料や有機材料を用いて構成される。特に、水分や酸素等、有機電界発光素子 30 における発光機能層 32 の劣化をもたらす物質の浸入を抑制する機能を有する材料で構成されることとする。このような材料として、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素、酸化窒化珪素、酸化炭化珪素等の無機材料が用いられる。さらに封止層の脆弱性を改良するために、これら無機材料からなる層や、有機材料からなる層を用いて積層構造としてもよい。また、封止層には導電層の腐食を防ぐ防腐剤を添加していてもよい。

[0267] これらの層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。

[0268] [保護層、保護板]

尚、ここでの図示は省略したが、透明基板 31 との間に有機電界発光素子 EL 及び封止材を挟んで保護層若しくは保護板を設けてもよい。この保護層若しくは保護板は、有機電界発光素子 EL を機械的に保護するためのものであり、特に封止材が封止層である場合には、有機電界発光素子 EL に対する機械的な保護が十分ではないため、このような保護層若しくは保護板を設け

ることが好ましい。

[0269] 以上のような保護層若しくは保護板は、ガラス板、ポリマー板、これよりも薄型のポリマーフィルム、金属板、これよりも薄型の金属フィルム、又はポリマー材料膜や金属材料膜が適用される。このうち特に、軽量かつ薄型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。

[0270] [有機電界発光素子の作製方法]

ここでは一例として、図3に示す有機電界発光素子30の製造方法を説明する。

[0271] まず、透明基板31上に、高屈折率層24を30nm程度の厚さに形成する。次に、AgAl層12を、0.5nm～5nmの厚さに形成する。その後、銀（又は銀を主成分とした合金）からなる導電層13を、AgAl層12との合計の厚さが3nm～15nmとなるように形成し、アノード側の透明電極20を透明基板31上に作製する。これらの高屈折率層24、AgAl層及び導電層13の形成は、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、スパッタ法、印刷法等があるが、均質な層が得られやすく、且つピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法が特に好ましい。また、導電層13の形成前後には、必要に応じて補助電極のパターン形成を行う。

[0272] 次にこの上に、正孔注入層32a、正孔輸送層32b、発光層32c、電子輸送層32d、電子注入層32eの順に形成し、発光機能層32を形成する。これらの各層の形成は、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、スパッタ法、印刷法等があるが、均質な層が得られやすく、且つピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法又はスピコート法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる形成方法を適用してもよい。これらの各層の形成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、一般に化合物を収蔵したボート加熱温度50℃～450℃、真空度 10^{-6} Pa～ 10^{-2} Pa、蒸着速度0.01nm/秒～50nm/秒、基板温度-50℃～300℃、厚さ0.1μm～5μmの範囲で、各

条件を適宜選択することが望ましい。

[0273] 次に、カソードとなる対向電極 33 を、蒸着法やスパッタ法などの適宜の形成方法によって形成する。この際、発光機能層 32 によって透明電極 20 に対して絶縁状態を保ちつつ、発光機能層 32 の上方から透明基板 31 の周縁に端子部分を引き出した形状にパターン形成する。

[0274] これにより、有機電界発光素子 30 が得られる。またその後には、有機電界発光素子 30 における透明電極 20 及び対向電極 33 の端子部分を露出させた状態で、少なくとも発光機能層 32 を覆う封止材を設ける。この際、接着剤を用いて、封止材を透明基板 31 側に接着し、これらの封止材－透明基板 31 間に有機電界発光素子 30 を封止する。

[0275] 以上により、透明基板 31 上に所望の有機電界発光素子 30 が得られる。このような有機電界発光素子 30 の作製においては、一回の真空引きで一貫して発光機能層 32 から対向電極 33 まで作製するのが好ましいが、途中で真空雰囲気から透明基板 31 を取り出して異なる形成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。

[0276] このようにして得られた有機電界発光素子 30 に直流電圧を印加する場合には、アノードである導電層 13 を＋の極性とし、カソードである対向電極 33 を－の極性として、電圧 2 V 以上 40 V 以下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。尚、印加する交流の波形は任意でよい。

[0277] [有機電界発光素子の効果]

以上説明した有機電界発光素子 30 は、上述の第 2 実施形態の導電性と光透過性とを兼ね備えた透明電極 20 をアノードとして用い、この上部に発光機能層 32 とカソードとなる対向電極 33 とをこの順に設けた構成である。このため、透明電極 20 と対向電極 33 との間に十分な電圧を印加して有機電界発光素子 30 での高輝度発光を実現しつつ、透明電極 20 側からの発光光 h の取り出し効率が向上することによる高輝度化を図ることが可能である。さらに、所定輝度を得るための駆動電圧の低減による発光寿命の向上を図

ることも可能になる。

[0278] 〈4. 有機電界発光素子（第4実施形態：トップエミッション型）〉

次に、本発明の第4実施形態について説明する。第4実施形態は、電子デバイスの一例として、上述の第2実施形態の透明電極を用いたトップエミッション型の有機電界発光素子について説明する。図4に、本実施形態の有機電界発光素子の断面構成図を示す。以下にこの図に基づいて有機電界発光素子の構成を説明する。

[0279] [有機電界発光素子の構成]

図4に示す有機電界発光素子40は、基板41上に設けられており、基板41側から順に、アノードとなる対向電極42、発光機能層32、およびカソードとなる透明電極20が積層されている。このうち、透明電極20として、上述の第2実施形態の透明電極20が用いられている。このため有機電界発光素子40は、基板41とは反対側の透明電極20側から発光光hを取り出すトップエミッション型として構成されている。

[0280] なお、図4に示す有機電界発光素子40において、上述の図3に示す第3実施形態の有機電界発光素子30と異なる構成は、基板41上に対向電極42を設け、この上部に発光機能層32と透明電極20とをこの順に積層している点である。以下、上述の第3実施形態の有機電界発光素子と同様の構成要素についての重複する詳細な説明は省略し、第4実施形態の有機電界発光素子40の構成を説明する。

[0281] 透明電極20は、上述の第2実施形態の透明電極20であり、発光機能層32側から順に導電層13、AgAl層12、及び、高屈折率層24が順に形成された構成である。ここでは特に、透明電極20を構成する導電層13が実質的なカソードとなる。

[0282] このような有機電界発光素子40の全体的な層構造が限定されることはなく、一般的な層構造であってよいことは、第3実施形態の有機電界発光素子と同様である。本実施形態の場合の一例としては、アノードとして機能する対向電極42の上部に、正孔注入層32a／正孔輸送層32b／発光層32c

／電子輸送層 3 2 d／電子注入層 3 2 e がこの順に積層され、さらにこの上部にカソードとなる透明電極 2 0 が積層された構成が例示される。ただし、このうち少なくとも有機材料を用いて構成された発光層 3 2 c を有することが必須である。また、電子輸送層 3 2 d は、電子注入層 3 2 e を兼ねたもので、電子注入性を有する電子輸送層 3 2 d として設けられていてもよい。

[0283] [発光層]

このような発光機能層 3 2 のうち、透明電極 2 0 を構成する導電層 1 3 の下地となる層、ここでは電子注入層 3 2 e は、第 3 実施形態の有機電界発光素子において説明した材料のうち、有機材料を用いて構成される。好ましくは、窒素含有化合物を用いて構成される。また、導電層 1 3 の下地となる層が、電子輸送層または電子輸送性を兼ねた電子注入層であれば、窒素含有化合物として、第 3 実施形態の有機電界発光素子において電子輸送層 3 2 d の材料として説明した一般式 (4) ～ (6) で示される化合物、その具体例として示した化合物 1 ～ 1 1 8 を好ましく用いる。

[0284] なお、発光機能層 3 2 は、これらの層の他にも、第 3 実施形態の有機電界発光素子で説明したと同様に、必要に応じたさまざまな構成が採用され、ここでの図示を省略した正孔阻止層や電子阻止層が設けられてもよい。以上のような構成において、透明電極 2 0 と対向電極 4 2 とで発光機能層 3 2 が挟持された部分のみが、有機電界発光素子 4 0 における発光領域となることも、第 3 実施形態の有機電界発光素子と同様である。

[0285] また、以上のような層構成においては、透明電極 2 0 の低抵抗化を図ることを目的とし、透明電極 2 0 の導電層 1 3 に接して補助電極が設けられていてもよいことも、第 3 実施形態の有機電界発光素子と同様である。

[0286] さらに、発光機能層 3 2 の下方にアノードとして設けられる対向電極 4 2 は、金属、合金、有機または無機の導電性化合物、およびこれらの混合物が用いられる。具体的には、金 (Au) 等の金属、ヨウ化銅 (CuI)、ITO、ZnO、TiO₂、SnO₂等の酸化物半導体などが挙げられる。

[0287] 以上のような対向電極 4 2 は、これらの導電性材料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、対向電極42としてのシート抵抗は、数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、厚さは通常5nm～5 μm 、好ましくは5nm～200nmの範囲で選ばれる。

[0288] またこのようなトップエミッション型の有機電界発光素子40を封止する封止材は、発光光hを取り出せるよう光透過性を有する透明封止材である。このような透明封止材は、先の第3実施形態の有機電界発光素子で用いた材料のうち、光透過性を有する材料を用いることができる。

[0289] [有機電界発光素子の効果]

以上説明した有機電界発光素子40は、上述の第2実施形態の導電性と光透過性とを兼ね備えた透明電極20をカソードとして用い、この透明電極20における導電層13側に発光機能層32とアノードとなる対向電極42とをこの順に設けた構成である。このため、第3実施形態の有機電界発光素子と同様に、透明電極20と対向電極42との間に十分な電圧を印加して有機電界発光素子40での高輝度発光を実現しつつ、透明電極20側からの発光光hの取り出し効率が向上することによる高輝度化を図ることが可能である。さらに、所定輝度を得るための駆動電圧の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

[0290] 〈5. 有機電界発光素子（第5実施形態：両面発光型）〉

次に、本発明の第5実施形態について説明する。第5実施形態は、電子デバイスの一例として、上述の第2実施形態の透明電極を用いた両面発光型の有機電界発光素子について説明する。図5に、本実施形態の有機電界発光素子の断面構成図を示す。以下にこの図に基づいて有機電界発光素子の構成を説明する。

[0291] [有機電界発光素子の構成]

図5に示す有機電界発光素子50は、透明基板31上に設けられており、透明基板31側から順に、アノードとなる透明電極20A、発光機能層32、及び、カソードとなる透明電極20Bがこの順に積層されている。このう

ち、透明電極 20 A, B は、上述の第 2 実施形態の透明電極 20 が用いられ、それぞれを区別するためにアノード側の構成に A、カソード側の構成に B の符号を付している。これにより有機電界発光素子 50 は、透明基板 31 側およびこれとは逆側の透明封止材側の両面から発光光 h を取り出す両面発光型として構成されている。

[0292] なお、図 5 に示す有機電界発光素子 50 において、上述の図 3 に示す第 3 実施形態の有機電界発光素子 30 と異なる構成は、封止材として透明封止材を用い、2 つの透明電極 20 間に発光機能層 32 を挟持させたところにある。以下、上述の第 3 実施形態及び第 4 実施形態の有機電界発光素子と同様の構成要素についての重複する詳細な説明は省略し、第 5 実施形態の有機電界発光素子の構成を説明する。

[0293] 有機電界発光素子 50 の全体的な層構造が限定されることはなく、一般的な層構造であってよいことは、第 3 実施形態の有機電界発光素子と同様である。本実施形態としては、アノードとなる透明電極 20 A の上部に、正孔注入層 32 a / 正孔輸送層 32 b / 発光層 32 c / 電子輸送層 32 d / 電子注入層 32 e をこの順に設けた構成が例示され、この上部にカソードとなる透明電極 20 B が積層された構成が例示される。

[0294] また本実施形態の有機電界発光素子 50 においては、透明基板 31 側に設けられた透明電極 20 A は、透明基板 31 側から高屈折率層 24 A、AgAl 層 12 A、導電層 13 A の順に設けられる。これに対して、発光機能層 32 上に設けられた透明電極 20 B は、発光機能層 32 側から導電層 13 B、AgAl 層 12 B、高屈折率層 24 B の順に設けられる。これにより、実質的にアノードとして機能する導電層 13 A と、実質的にカソードとして機能する導電層 13 B との間に発光機能層 32 が挟持された状態となる。

[0295] 尚、発光機能層 32 は、第 3 実施形態の有機電界発光素子で説明したと同様に、必要に応じたさまざまな構成が採用され、ここでの図示を省略した正孔阻止層や電子阻止層が設けられてもよい。以上のような構成において、2 つの透明電極 20 A, B で挟持された部分のみが、有機電界発光素子 50 に

おける発光領域となることも、第3実施形態の有機電界発光素子と同様である。

[0296] ただし、発光機能層32のうち、発光機能層32上に設けられた透明電極20Bを構成する導電層13Bの下地となる層、ここでは電子注入層32eは、第3実施形態の有機電界発光素子で説明した材料のうち、有機材料を用いて構成される。好ましくは、窒素含有化合物を用いて構成される。窒素含有化合物としては、第3実施形態の有機電界発光素子で電子輸送層32dの材料として説明した一般式(4)～(6)で示される化合物、その具体例として示した化合物1～118を好ましく用いる。

[0297] また以上のような層構成においては、透明電極20の低抵抗化を図ることを目的とし、2つの透明電極20A、Bの導電層13に接して補助電極が設けられていてもよいことも、第3実施形態の有機電界発光素子と同様である。

[0298] さらにこの有機電界発光素子50は、両面発光型であるため、光透過性を有する透明封止材によって封止される。

[0299] [有機電界発光素子の効果]

以上説明した有機電界発光素子50は、上述の第2実施形態の導電性と光透過性とを兼ね備えた透明電極20をアノードおよびカソードとして用い、この間に発光機能層32を挟持した構成である。このため、第3実施形態の有機電界発光素子と同様に、2つの透明電極20間に十分な電圧を印加して有機電界発光素子50での高輝度発光を実現しつつ、2つの透明電極20側からの発光光hの取り出し効率が向上することによる高輝度化を図ることが可能である。さらに、所定輝度を得るための駆動電圧の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

[0300] <6. 有機電界発光素子(第6実施形態：逆積み構成)>

次に、本発明の第6実施形態について説明する。第6実施形態は、電子デバイスの一例として、上述の第3実施形態の有機電界発光素子において、透明基板31側から順にカソード(透明電極20)、発光機能層32、アノード

ド（対向電極 4 2）を設けて積層順を逆にした、ボトムエミッション型の有機電界発光素子について説明する。図 6 に、本実施形態の有機電界発光素子の断面構成図を示す。以下にこの図に基づいて有機電界発光素子の構成を説明する。

[0301] [有機電界発光素子の構成]

図 6 に示す有機電界発光素子 6 0 は、透明基板 3 1 上に設けられており、透明基板 3 1 側から順に、カソードとなる透明電極 2 0、発光機能層 3 2、およびアノードとなる対向電極 3 3 がこの順に積層されている。このうち、透明電極 2 0 として、先に説明した本発明の透明電極 2 0 を用いているところが特徴的である。このため有機電界発光素子 6 0 は、少なくとも透明基板 3 1 側から発光光 h を取り出すボトムエミッション型として構成されている。

[0302] このような有機電界発光素子 6 0 の全体的な層構造が限定されることはなく、一般的な層構造であってよいことは、第 3 実施形態の有機電界発光素子と同様である。本実施形態の場合の一例としては、カソードとなる透明電極 2 0 の上部に、電子注入層 3 2 e / 電子輸送層 3 2 d / 発光層 3 2 c / 正孔輸送層 3 2 b / 正孔注入層 3 2 a をこの順に設けた構成が例示され、この上部にアノードとなる対向電極 3 3 が積層された構成が例示される。

[0303] 尚、発光機能層 3 2 は、第 3 実施形態の有機電界発光素子で説明したと同様に、必要に応じたさまざまな構成が採用され、ここでの図示を省略した正孔阻止層や電子阻止層が設けられてもよい。以上のような構成において、透明電極 2 0 と対向電極 3 3 とで挟持された部分のみが、有機電界発光素子 6 0 における発光領域となることも、第 3 実施形態の有機電界発光素子と同様である。

[0304] また以上のような層構成においては、透明電極 2 0 の低抵抗化を図ることを目的とし、透明電極 2 0 の導電層 1 3 に接して補助電極が設けられていてもよいことも、第 3 実施形態の有機電界発光素子と同様である。

[0305] さらに、発光機能層 3 2 の上方にアノードとして設けられる対向電極 3 3

は、第3実施形態の有機電界発光素子のアノードと同様の金属、合金、有機または無機の導電性化合物、およびこれらの混合物が用いられる。

[0306] [有機電界発光素子の効果]

以上説明した有機電界発光素子60は、上述の第2実施形態の導電性と光透過性とを兼ね備えた透明電極20をカソードとして用い、この上部に発光機能層32とアノードとなる対向電極33とをこの順に設けた構成である。このため、第3実施形態の有機電界発光素子と同様に、透明電極20と対向電極33との間に十分な電圧を印加して有機電界発光素子60での高輝度発光を実現しつつ、透明電極20側からの発光光hの取り出し効率が向上することによる高輝度化を図ることが可能である。さらに、所定輝度を得るための駆動電圧の低減による発光寿命の向上を図ることも可能になる。

[0307] [有機電界発光素子の用途]

上述した各実施形態の有機電界発光素子は、上述したように面発光体であるため各種の発光光源として用いることができる。例えば、家庭用照明や車内照明などの照明装置、時計や液晶用のバックライト、看板広告用照明、信号機の光源、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機的光源、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く、特にカラーフィルターと組み合わせた液晶表示装置のバックライト、照明用光源としての用途に有効に用いることができる。

[0308] また、各実施形態の有機電界発光素子は、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。この場合、近年の照明装置およびディスプレイの大型化にともない、有機電界発光素子を設けた発光パネル同士を平面的に接合する、いわゆるタイリングによって発光面を大面積化してもよい。

[0309] 動画再生用の表示装置として使用する場合は、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。また異なる発光色を有する本発明の有機電界発光素子を2種以上使用

することにより、カラーまたはフルカラー表示装置を作製することが可能である。

[0310] 〈7. 照明装置〉

[照明装置－1]

本発明の第7実施形態について説明する。第7実施形態は、電子デバイスの一例として上述の各実施形態の有機電界発光素子を用いた照明装置について説明する。

[0311] 本実施形態の照明装置に用いる有機電界発光素子は、上述した構成の各有機電界発光素子に共振器構造を持たせた設計としてもよい。共振器構造として構成された有機電界発光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。

[0312] なお、有機電界発光素子に用いられる材料は、実質的に白色の発光を生じる有機電界発光素子（白色有機電界発光素子ともいう）に適用できる。例えば、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こともできる。複数の発光色の組み合わせとしては、赤色、緑色、青色の3原色の3つの発光極大波長を含有させてもよいし、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させてもよい。

[0313] 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、複数のリン光又は蛍光で発光する材料の組み合わせや、蛍光又はリン光で発光する発光材料と、発光材料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でもよい。白色有機電界発光素子においては、発光ドーパントを複数組み合わせ混合してもよい。

[0314] このような白色有機電界発光素子は、各色発光の有機電界発光素子をアレー状に個別に並列配置して白色発光を得る構成と異なり、有機電界発光素子自体が白色を発光する。このため、素子を構成するほとんどの層の形成にマ

スクを必要とせず、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で例えば導電層を形成でき、生産性も向上する。

[0315] また、このような白色有機電界発光素子の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、上述の有機電界発光素子の実施形態に記載の金属錯体、また公知の発光材料の中から任意の材料を選択して組み合わせて白色化すればよい。

[0316] 以上に説明した白色有機電界発光素子を用いれば、実質的に白色の発光を生じる照明装置を作製することが可能である。

[0317] [照明装置－２]

また、照明装置は、例えば有機電界発光素子を複数用いることにより、発光面を大面積化することもできる。この場合、透明基板上に有機電界発光素子を設けた複数の発光パネルを、支持基板上に複数配列する（すなわちタイリングする）ことによって発光面を大面積化する。支持基板は、封止材を兼ねるものであってもよく、この支持基板と、発光パネルの透明基板との間に有機電界発光素子を挟持する状態で各発光パネルをタイリングする。支持基板と透明基板との間には接着剤を充填し、これによって有機電界発光素子を封止してもよい。尚、発光パネルの周囲には、透明電極及び対向電極の端子を露出させておく。

[0318] このような構成の照明装置では、各発光パネルの中央が発光領域となり、発光パネル間には非発光領域が発生する。このため、非発光領域からの光取り出し量を増加させるための光取り出し部材を、光取り出し面の非発光領域に設けてもよい。光取り出し部材としては、集光シートや光拡散シートを用いることができる。

実施例 1

[0319] 以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[透明電極の作製]

試料 101～138 の各透明電極を、導電性領域の面積が $5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$ となるように作製した。下記表 1 には、試料 101～138 の各透明電極における各層の構成を示した。

[0320] [試料 101～103 の透明電極の作製]

以下のようにして、ガラス製の基材上に、下記表 1 に示すそれぞれの厚さで銀からなる導電層を形成した。

[0321] 先ず、透明な無アルカリガラス製の基材を、市販の真空蒸着装置の基材ホルダーに固定し、真空蒸着装置の真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに銀 (Ag) を入れ、当該真空槽内に取り付けた。次に、真空槽を $4 \times 10^{-4}\text{ Pa}$ まで減圧した後、抵抗加熱ボートを通電して加熱し、蒸着速度 $0.1\text{ nm/秒} \sim 0.2\text{ nm/秒}$ で、銀からなる導電層をそれぞれの厚さで形成した。試料 101 では厚さ 6 nm で形成し、試料 102 では厚さ 8 nm で形成し、試料 103 では厚さ 15 nm で形成した。

[0322] [試料 104～106 の透明電極の作製]

以下のようにして、ガラス製の基材上に、二酸化チタン (TiO_2) からなる高屈折率層を 30 nm の厚さで形成し、この上部に銀からなる導電層を下記表 1 に示すそれぞれの厚さで形成した。

[0323] 先ず、透明な無アルカリガラス製の基材を電子ビーム蒸着装置の基材ホルダーに固定し、酸化チタン (TiO_2) を加熱ボートに入れ、これらの基板ホルダーと加熱ボートとを電子ビーム蒸着装置の真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに銀 (Ag) を入れ、真空蒸着装置の真空槽に取り付けた。

[0324] 次に、電子ビーム蒸着装置の真空槽を $4 \times 10^{-4}\text{ Pa}$ まで減圧した後、二酸化チタン (TiO_2) の入った加熱ボートに電子ビームを照射して加熱し、蒸着速度 $0.1\text{ nm/秒} \sim 0.2\text{ nm/秒}$ で基材上に厚さ 30 nm の二酸化チタンからなる高屈折率層を設けた。

[0325] 次に、高屈折率層まで形成した基材を真空蒸着装置の真空槽に移し、当該真空槽を $4 \times 10^{-4}\text{ Pa}$ まで減圧した後、銀の入った抵抗加熱ボートを通電

して加熱した。これにより、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で、銀からなる導電層をそれぞれの厚さで形成した。試料 104 では厚さ 6 nm で形成し、試料 105 では厚さ 8 nm で形成し、試料 106 では厚さ 15 nm で形成した。

[0326] [試料 107 の透明電極の作製]

以下のようにして、ガラス製の基材上に、 AgAl 層 (Al 含有率 $70 \text{ at\%}$) を 5 nm の厚さで形成し、この上部に銀からなる導電層を 10 nm の厚さで形成した。

[0327] 先ず、透明な無アルカリガラス製の基材を市販の真空蒸着装置の基材ホルダーに固定し、真空蒸着装置の第 1 真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに AgAl (Al 含有率 $70 \text{ at\%}$) を入れ、当該第 1 真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに銀 (Ag) を入れ、真空蒸着装置の第 2 真空槽に取り付けた。

[0328] 次に、真空蒸着装置の第 1 真空槽を $4 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ まで減圧した後、 AgAl の入った抵抗加熱ボートを通電して加熱した。これにより、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で高屈折率層上に AgAl 層を 5 nm の厚さで設けた。

[0329] 次に、 AgAl 層まで形成した基材を第 2 真空槽に移し、第 2 真空槽を $4 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ まで減圧した後、銀の入った抵抗加熱ボートを通電して加熱した。これにより、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で厚さ 10 nm の銀からなる導電層を形成した。

[0330] [試料 108 の透明電極の作製]

導電層の厚さを 3 nm とした以外は、上記試料 107 と同様の手順で試料 108 の各透明電極を得た。

[0331] [試料 109 ~ 113 の透明電極の作製]

AgAl 層を表 1 に示す Al 含有率 ($50 \text{ at\%}$ 、 $10 \text{ at\%}$ 、 $5 \text{ at\%}$ 、 $1 \text{ at\%}$ 、 $0.5 \text{ at\%}$) にそれぞれ変更した以外は、上記試料 108 と同様の手順で試料 109 ~ 113 の各透明電極を得た。

[0332] [試料 1 1 4 ~ 1 1 9 の透明電極の作製]

A g A l 層を表 1 に示す A l 含有率 (7 0 a t m % 、 5 0 a t m % 、 1 0 a t m % 、 5 a t m % 、 1 a t m % 、 0 . 5 a t m %) にそれぞれ変更し、A g A l 層の厚さを 1 n m に変更し、さらに、導電層の厚さを 7 n m とした以外は、上記試料 1 0 7 と同様の手順で試料 1 1 4 ~ 1 1 9 の各透明電極を得た。

[0333] [試料 1 2 0 ~ 1 2 5 の透明電極の作製]

A g A l 層を表 1 に示す A l 含有率 (7 0 a t m % 、 5 0 a t m % 、 1 0 a t m % 、 5 a t m % 、 1 a t m % 、 0 . 5 a t m %) にそれぞれ変更し、A g A l 層の厚さを 0 . 5 n m に変更し、さらに、導電層の厚さを 7 . 5 n m とした以外は、上記試料 1 0 7 と同様の手順で試料 1 2 0 ~ 1 2 5 の各透明電極を得た。

[0334] [試料 1 2 6 の透明電極の作製]

基材としてポリエチレンテレフタレート (P E T) を用いたこと以外は、上記試料 1 2 5 と同様の手順で試料 1 2 6 の透明電極を得た。

[0335] [試料 1 2 7 の透明電極の作製]

以下のようにして、ガラス製の基材上に、二酸化チタン (T i O ₂) からなる高屈折率層を 3 0 n m の厚さで形成し、この上部に A g A l 層 (A l 含有率 1 0 a t m %) を 5 n m の厚さで形成し、さらに銀からなる導電層を 3 n m の厚さで形成した。

[0336] 先ず、透明な無アルカリガラス製の基材を市販の電子ビーム蒸着装置の基材ホルダーに固定し、二酸化チタン (T i O ₂) を加熱ボートに入れ、これらの基板ホルダーと加熱ボートとを電子ビーム蒸着装置の真空槽に取り付けた。次に、タングステン製の抵抗加熱ボートに A g A l (A l 含有率 1 0 a t m %) を入れ、真空蒸着装置の第 1 真空槽に取り付けた。また、タングステン製の抵抗加熱ボートに銀 (A g) を入れ、真空蒸着装置の第 2 真空槽に取り付けた。

[0337] 次に、電子ビーム蒸着装置の真空槽を 4×10^{-4} P a まで減圧した後、二

酸化チタンの入った加熱ボートに電子ビームを照射し加熱して、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で基材上に厚さ 30 nm の二酸化チタンからなる高屈折率層を設けた。

[0338] 続いて、高屈折率層まで形成した基材を真空のまま真空蒸着装置の第1真空槽に移し、第1真空槽を $4 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ まで減圧した後、 AgAl の入った抵抗加熱ボートを通電して加熱した。これにより、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で高屈折率層上に AgAl 層を 5 nm の厚さで設けた。

[0339] 次に、アルミニウム含有層まで形成した基材を第2真空槽に移し、第2真空槽を $4 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ まで減圧した後、銀の入った抵抗加熱ボートを通電して加熱した。これにより、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ で厚さ 3 nm の銀からなる導電層を形成した。

[0340] [試料128～130の透明電極の作製]

AgAl 層を表1に示す Al 含有率 ($5 \text{ at\%}$ 、 $1 \text{ at\%}$ 、 $0.5 \text{ at\%}$) にそれぞれ変更した以外は、上記試料127と同様の手順で試料128～130の各透明電極を得た。

[0341] [試料131～134の透明電極の作製]

AgAl 層を表1に示す Al 含有率 ($10 \text{ at\%}$ 、 $5 \text{ at\%}$ 、 $1 \text{ at\%}$ 、 $0.5 \text{ at\%}$) にそれぞれ変更し、 AgAl 層の厚さを 0.5 nm に変更し、さらに、導電層の厚さを 7.5 nm とした以外は、上記試料127と同様の手順で試料131～134の各透明電極を得た。

[0342] [試料135の透明電極の作製]

高屈折率層に用いる材料を酸化ニオブ (Nb_2O_5) とした以外は、上記試料134と同様の手順で試料135の各透明電極を得た。

[0343] [試料136の透明電極の作製]

高屈折率層に用いる材料を酸化タンタル (Ta_2O_5) とした以外は、上記試料134と同様の手順で試料136の各透明電極を得た。

[0344] [試料137の透明電極の作製]

高屈折率層に用いる材料を酸化セリウム (CeO) とした以外は、上記試

料 1 3 4 と同様の手順で試料 1 3 7 の各透明電極を得た。

[0345] [試料 1 3 8 の透明電極の作製]

導電層に用いる材料を A g A u (A u 含有率 5 a t m %) とした以外は、
上記試料 1 2 5 と同様の手順で試料 1 3 8 の各透明電極を得た。

[0346] [実施例 1 の各試料の評価]

上記で作製した試料 1 0 1 ~ 1 3 8 の各透明電極について、光透過率、シート抵抗値、及び、保存性を測定した。

光透過率の測定は、分光光度計（日立製作所製 U - 3 3 0 0 ）を用い、試料と同じ基材をベースラインとして行った。

シート抵抗値の測定は、抵抗率計（三菱化学社製 M C P - T 6 1 0 ）を用い、4 端子 4 探針法定電流印加方式で行った。

保存性の測定においては、高温環境（6 0 °C）下に試料 1 0 1 ~ 1 3 8 の各発光パネルを 7 日間保存した後、文字を表した画像の上部に透明電極が形成された透明基板を重ね合わせ、これらを介しての文字の見えやすさを 5 段階評価した。5 段階評価は、透明電極の電極面に対する方線方向を 0 ° とし 0 ° と 4 5 ° の 2 つの角度から行い、これを平均した。

結果を下記表 1 に合わせて示す。

[0347]

[表1]

試料 No.	透明電極の構成							評価結果			
	基板	高屈折率層		AgAl層		導電層		透過率% (550nm)	面抵抗 Ω/sq.	保存性	
	材料	化合物	厚さ nm	Al含有率 atm%	厚さ nm	化合物	厚さ nm				
101	ガラス	—	—	—	—	Ag	6	45	測定不可		比較
102	↓	—	—	—	—	↓	8	41	測定不可		比較
103	↓	—	—	—	—	↓	15	25	5.0		比較
104	↓	TiO ₂	30	—	—	↓	6	50	測定不可		比較
105	↓	↓	↓	—	—	↓	8	46	測定不可		比較
106	↓	↓	↓	—	—	↓	15	29	4.9		比較
107	↓	—	—	70	5	↓	10	44	5.5	2	比較
108	↓	—	—	70	5	↓	3	65	20.3	2	比較
109	↓	—	—	50	↓	↓	↓	68	18.6	4	本発明
110	↓	—	—	10	↓	↓	↓	71	14.2	4	本発明
111	↓	—	—	5	↓	↓	↓	73	13.5	4	本発明
112	↓	—	—	1	↓	↓	↓	74	11.4	4	本発明
113	↓	—	—	0.5	↓	↓	↓	74	10.9	4	本発明
114	↓	—	—	70	1	↓	7	76	16.0	2	比較
115	↓	—	—	50	↓	↓	↓	76	13.4	4	本発明
116	↓	—	—	10	↓	↓	↓	77	11.7	4	本発明
117	↓	—	—	5	↓	↓	↓	78	10.7	4	本発明
118	↓	—	—	1	↓	↓	↓	>80	9.5	4	本発明
119	↓	—	—	0.5	↓	↓	↓	>80	9.2	4	本発明
120	↓	—	—	70	0.5	↓	7.5	76	15.6	2	比較
121	↓	—	—	50	↓	↓	↓	76	12.9	4	本発明
122	↓	—	—	10	↓	↓	↓	77	11.3	4	本発明
123	↓	—	—	5	↓	↓	↓	78	10.2	4	本発明
124	↓	—	—	1	↓	↓	↓	>80	9.2	4	本発明
125	↓	—	—	0.5	↓	↓	↓	>80	8.7	4	本発明
126	PET	—	—	0.5	↓	↓	↓	>80	9.1	4	本発明
127	ガラス	TiO ₂	30	10	5	↓	3	76	14.3	4	本発明
128	↓	↓	↓	5	↓	↓	↓	78	13.7	4	本発明
129	↓	↓	↓	1	↓	↓	↓	79	11.9	4	本発明
130	↓	↓	↓	0.5	↓	↓	↓	79	11.0	4	本発明
131	↓	TiO ₂	30	10	0.5	↓	7.5	>80	11.6	4	本発明
132	↓	↓	↓	5	↓	↓	↓	>80	10.1	4	本発明
133	↓	↓	↓	1	↓	↓	↓	>80	9.6	4	本発明
134	↓	↓	↓	0.5	↓	↓	↓	>80	8.7	4	本発明
135	↓	Nb ₂ O ₅	↓	↓	↓	↓	↓	>80	9.0	4	本発明
136	↓	Ta ₂ O ₅	↓	↓	↓	↓	↓	>80	9.1	4	本発明
137	↓	CeO	↓	↓	↓	↓	↓	>80	9.2	4	本発明
138	↓	—	—	0.5	↓	AgAu	↓	>80	9.1	4	本発明

[0348] [実施例1の評価結果]

表1に示す結果から、AgAl層を有していない試料101～106は、透過率が低いことがわかる。これらは、AgAl層を備えていないことにより、導電層を構成するAgの凝集が起き、導電層の均一性が低下したためで

ある。また、この試料 101～106 では、Ag の凝集により抵抗値が大きく、導電層を 15 nm と厚く形成した試料 103 と試料 106 以外は、抵抗値が測定できなかった。また、試料 103 と試料 106 では、導電層が 15 nm と厚いため、透過率が他の試料よりも低下している。

[0349] また、AgAl 層において、Al 含有率が 70 at % と高い試料 107、試料 108、試料 114、及び、試料 120 では、保存性が低下している。これは、AgAl 層中の Al 含有量が大きいこと、Al の酸化による AgAl 層の形状変化が発生したためである。高温保存時に Al の酸化が進行し、さらに酸化アルミニウムの結晶成長や凝集等が発生し、AgAl 層の均一性が低下することにより透明電極の視認性が低下したと考えられる。

[0350] さらに、試料 107 は、同じ Al 含有率の試料 108、試料 114、及び、試料 120 に比べて透過率が低下している。これは、試料 107 の AgAl 層と導電層との合計厚さが 15 nm であり、他の試料よりも大きいこと、透過率が低下した。これは、上記試料 103 及び試料 106 と同様の理由であり、AgAl 層と導電層との合計の厚さが、透明電極の透過率に影響を与えることを意味している。この結果から、AgAl 層と導電層の合計の厚さが小さい方が、透明電極の透過率が高くなることがわかる。

[0351] また、導電層と AgAl 層の厚さを一定とし、AgAl 層の Al 含有率を変化させた、試料 108～113、試料 114～119、及び、試料 120～125 では、Al 含有率が低い方が、透過率、面抵抗、及び、保存性のすべての値が向上している。この結果から、AgAl 層において、Al 含有率が低い程、透明電極の特性が向上することがわかる。

しかしながら、AgAl 層を設けていない試料 101～106 の結果を考慮すると、Al 含有層を有していない場合には、Ag からなる導電層の形成が困難となる。

さらに、Al 含有率を 1 at % から 0.5 at % に低下させた場合にも、透明電極の特性が向上していることから、AgAl 層中の Al の含有率は、0.5 at % 未満でも透明電極の特性の向上が可能であると考えられ

る。このため、A l 含有率は、A g A l 層上に形成される A g を主成分とする導電層の膜均一性が維持できる限り、小さいことが好ましい。

[0352] 基材として P E T フィルムを用いた試料 1 2 6 においても、試料 1 2 5 と同程度の結果が得られていることから、透明電極の基材としては、ガラスと同様に樹脂フィルムを用いることができる。

[0353] 高屈折率層とした T i O₂ を形成した試料 1 2 7 ~ 1 3 0、及び、試料 1 3 1 ~ 1 3 4 では、高屈折率層を形成していないことを除いて同じ条件で形成された試料 1 1 0 ~ 1 1 3、及び、試料 1 2 2 ~ 1 2 5 に比べて、面抵抗はほとんど変わらないものの、透過率が向上している。また、高屈折率層として N b₂O₅、T a₂O₅、又は、C e O を用いた試料 1 3 5 ~ 1 3 7 では、試料 1 2 5 と同等の透過率を示している。

この結果から、高屈折率層を有することにより、透明電極の透過率が向上することがわかる。

[0354] さらに、試料 1 3 8 は、導電層として、A g のかわりに A g A u を用いている。この試料 1 3 8 においても、透明電極の透過率、面抵抗、及び、保存性は、A g のみで導電層を形成した他の試料と同程度の結果を示している。このため、試料 1 3 8 の結果から、導電層は A g を主成分とすることにより、A g のみから構成された場合以外でも透明電極の特性が向上することがわかる。

実施例 2

[0355] [ボトムエミッション型の有機電界発光素子の作製]

実施例 1 で作製した透明電極の試料 1 0 1 ~ 1 3 8 を、アノードとして発光機能層の下部に設けたボトムエミッション型の有機電界発光素子の試料 2 0 1 ~ 2 3 8 を作製した。図 7 を参照し、作製手順を説明する。尚、下記表 2 には、試料 2 0 1 ~ 2 3 8 の有機電界発光素子に用いた透明電極の構成を示している。各有機電界発光素子の試料 2 0 1 ~ 2 3 8 には、試料番号の下 2 ケタが一致する実施例 1 の各試料 1 0 1 ~ 1 3 8 の透明電極を用いた。

[0356] [試料 2 0 1 ~ 2 3 8 の有機電界発光素子の作製手順]

(透明電極の形成)

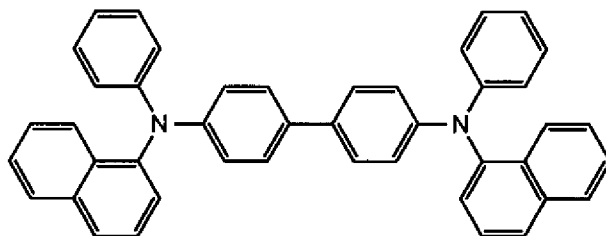
まず、試料 201～238 の作製において、透明な無アルカリガラス製又はポリエチレンテレフタレート (PET) 製の透明基板 71 の上部に、各透明電極 72 を形成した。各透明電極 72 の形成は、実施例 1 の試料 101～138 と同様の手順で行った。

[0357] (正孔輸送・注入層の形成)

まず、正孔輸送注入材料として下記構造式に示す α -NPD が入った加熱ボートに通電して加熱し、 α -NPD よりなる正孔注入層と正孔輸送層とを兼ねた正孔輸送・注入層 73 を、透明電極 72 上に形成した。この際、蒸着速度 0.1 nm/秒～0.2 nm/秒、厚さ 20 nm とした。

[0358] [化63]

α -NPD



[0359] (発光層の形成)

次に、先に構造式を示したホスト材料 H4 の入った加熱ボートと、先に構造式を示した燐光発光性化合物 Ir-4 の入った加熱ボートとを、それぞれ独立に通電し、ホスト材料 H4 と燐光発光性化合物 Ir-4 とよりなる発光層 74 を、正孔輸送・注入層 73 上に形成した。この際、蒸着速度がホスト材料 H4 : 燐光発光性化合物 Ir-4 = 100 : 6 となるように、加熱ボートの通電を調節した。また厚さ 30 nm とした。

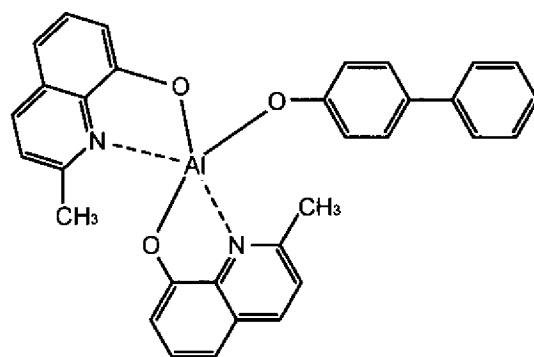
[0360] (正孔阻止層の形成)

次に、正孔阻止材料として下記構造式に示す BA1q が入った加熱ボートに通電して加熱し、BA1q よりなる正孔阻止層 75 を、発光層 74 上に形

成した。この際、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/秒} \sim 0.2 \text{ nm/秒}$ 、厚さ 10 nm とした。

[0361] [化64]

BAIq



[0362] (電子輸送・注入層の形成)

その後、電子輸送材料として先に構造式を示した化合物 10 の入った加熱ボートと、フッ化カリウムが入った加熱ボートとを、それぞれ独立に通電し、化合物 10 とフッ化カリウムとよりなる電子注入層と電子輸送層とを兼ねた電子輸送・注入層 76 を、正孔阻止層 75 上に形成した。この際、蒸着速度が化合物 10 : フッ化カリウム = 75 : 25 になるように、加熱ボートの通電を調節した。また厚さ 30 nm とした。

[0363] (対向電極：カソードの形成)

以上の後には、発光機能層が形成された透明基板 71 を、真空蒸着装置の第 2 真空槽内に移送し、第 2 真空槽内を $4 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ まで減圧した後、第 2 真空槽内に取り付けられたアルミニウムの入った加熱ボートを通電して加熱した。これにより、蒸着速度 0.3 nm/秒 で厚さ 100 nm のアルミニウムからなる対向電極 77 を形成した。この対向電極 77 は、カソードとして用いられる。以上により透明基板 71 上に、ボトムエミッション型の有機電界発光素子 70 を形成した。

[0364] (素子の封止)

その後、有機電界発光素子 70 を、厚さ $300\ \mu\text{m}$ のガラス基板からなる封止材で覆い、有機電界発光素子 70 を囲む状態で、透明封止材と透明基板 71 との間に接着剤（シール材）を充填した。接着剤としては、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラックストラック LC0629B）を用いた。透明封止材と透明基板 71 との間に充填した接着剤に対して、ガラス基板（透明封止材）側から UV 光を照射し、接着剤を硬化させて有機電界発光素子 70 を封止した。

[0365] 尚、有機電界発光素子 70 の形成においては、各層の形成に蒸着マスクを使用し、 $5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$ の透明基板 71 における中央の $4.5\text{ cm} \times 4.5\text{ cm}$ を発光領域とし、発光領域の全周に幅 0.25 cm の非発光領域を設けた。また、アノードである透明電極 72 の導電層と、カソードである対向電極 77 とは、正孔輸送・注入層 73 から電子輸送・注入層 76 によって絶縁された状態で、透明基板 71 の周縁に端子部分を引き出された形状で形成した。

[0366] 以上のようにして、透明基板 71 上に有機電界発光素子 70 を設け、これを透明封止材と接着剤とで封止した試料 201～238 の有機電界発光素子の各発光パネルを得た。これらの各発光パネルにおいては、発光層 74 で発生した各色の発光光 h が、透明基板 71 側から取り出される。

[0367] [実施例 2 の各試料の評価]

試料 201～238 で作製した有機電界発光素子 70 について、駆動電圧および色度差を測定した。この結果を下記表 2 に合わせて示す。

[0368] 駆動電圧の測定においては、各有機電界発光素子 70 の透明電極 72 側（すなわち透明基板 71 側）での正面輝度が 1000 cd/m^2 となるときの電圧を駆動電圧として測定した。尚、輝度の測定には分光放射輝度計 CS-1000（コニカミノルタセンシング製）を用いた。得られた駆動電圧の数値が小さいほど、好ましい結果であることを表わす。

[0369] また色度差の測定においては、各有機電界発光素子 70 に 2.5 mA/cm^2 の電流を加え、角度の異なる位置から CIE1931 表色系における色度

を測定した。この際、透明電極 7 2 側の発光面に対する法線方向となる 0° の位置と、垂直水平（上下左右）方向にそれぞれ 45° の各位置とで色度を測定した。角度の異なる位置において測定した色度の差を、色度差として下記表 2 に示した。色度差は、色度の視野角特性を表し、数値が小さいほど好ましい結果となる。

[0370] [表2]

試料 No.	透明 電極	透明電極の構成							評価結果		
		基板	高屈折率層		AgAl層		導電層		駆動電圧 V	色度差 Δxy	
		材料	化合物	厚さ nm	Al含有率 atm%	厚さ nm	化合物	厚さ nm			
201	101	ガラス	—	—	—	—	Ag	6	発光せず		比較
202	102	↓	—	—	—	—	↓	8	発光せず		比較
203	103	↓	—	—	—	—	↓	15	<5	0.15	比較
204	104	↓	TiO ₂	30	—	—	↓	6	発光せず		比較
205	105	↓	↓	↓	—	—	↓	8	発光せず		比較
206	106	↓	↓	↓	—	—	↓	15	<5	0.15	比較
207	107	↓	—	—	70	5	↓	10	7	0.07	比較
208	108	↓	—	—	70	5	↓	3	7	0.05	比較
209	109	↓	—	—	50	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
210	110	↓	—	—	10	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
211	111	↓	—	—	5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
212	112	↓	—	—	1	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
213	113	↓	—	—	0.5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
214	114	↓	—	—	70	1	↓	7	7	<0.03	比較
215	115	↓	—	—	50	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
216	116	↓	—	—	10	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
217	117	↓	—	—	5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
218	118	↓	—	—	1	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
219	119	↓	—	—	0.5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
220	120	↓	—	—	70	0.5	↓	7.5	6	<0.03	比較
221	121	↓	—	—	50	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
222	122	↓	—	—	10	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
223	123	↓	—	—	5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
224	124	↓	—	—	1	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
225	125	↓	—	—	0.5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
226	126	PET	—	—	0.5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
227	127	ガラス	TiO ₂	30	10	5	↓	3	<5	<0.03	本発明
228	128	↓	↓	↓	5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
229	129	↓	↓	↓	1	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
230	130	↓	↓	↓	0.5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
231	131	↓	TiO ₂	30	10	0.5	↓	7.5	<5	<0.03	本発明
232	132	↓	↓	↓	5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
233	133	↓	↓	↓	1	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
234	134	↓	↓	↓	0.5	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
235	135	↓	Nb ₂ O ₅	↓	↓	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
236	136	↓	Ta ₂ O ₅	↓	↓	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
237	137	↓	CeO	↓	↓	↓	↓	↓	<5	<0.03	本発明
238	138	↓	—	—	0.5	↓	AgAu	↓	<5	<0.03	本発明

[0371] [実施例2の評価結果]

表2に示す結果から、AgAl層を有していない試料201～206は、導電層を15nmと厚く形成した試料203と試料206を除き、発光が得られないことが確認された。これらは、使用した透明電極の抵抗値が高く電極として機能しなかったためである。

また、試料203及び試料206の有機電界発光素子は、導電層が厚さ15nmと厚く電極として機能するため、5V以下の低い駆動電圧により発光が得られることが確認された。しかしながら、試料203及び試料206の有機電界発光素子は、導電層が厚く形成されているため、視野角による色度差が0.15と大きいことが確認された。

[0372] また、AgAl層において、Al含有率が70atm%と高い試料207、試料208、試料214、及び、試料220では、駆動電圧が6～7Vと高い結果となった。これは、AgAl層中のAl含有量が大きいため、Alの酸化によってAgAl層が劣化したためである。

さらに、試料207は、同じAl含有率の試料208、試料214、及び、試料220に比べて色度差が0.07と大きい。これは、試料207のAgAl層と導電層との合計厚さが15nmであり、他の試料よりも大きいためである。

[0373] また、導電層とAgAl層の厚さを一定とし、AgAl層のAl含有率を変化させた、試料208～225では、Al含有率が50atm%以下の試料では、駆動電圧、色度差共に良好な結果が得られた。同様に、基材としてPETフィルムを用いた試料226や、高屈折率層としてTiO₂、Nb₂O₅、Ta₂O₅、又は、CeOを形成した試料227～237においても、駆動電圧、色度差共に良好な結果が得られた。さらに、導電層として、AgAuを用いた試料238においても、駆動電圧、色度差共に良好な結果が得られた。

[0374] 以上の結果から、本発明の構成の透明電極を用いた有機電界発光素子は、

低い駆動電圧での高輝度発光と安定した面発光が可能であることが確認された。また、これにより、所定輝度を得るための駆動電圧の低減と、発光寿命の向上が見込まれることが確認された。

[0375] なお、本発明は上述の実施形態例において説明した構成に限定されるものではなく、その他本発明構成を逸脱しない範囲において種々の変形、変更が可能である。

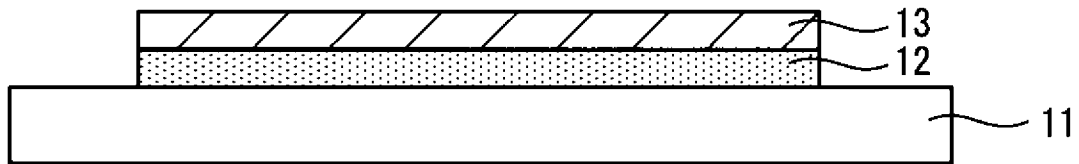
符号の説明

[0376] 10, 20, 20A, 20B, 72 透明電極、11, 41 基材、12, 12A, 12B AgAl層、13, 13A, 13B 導電層、24, 24A, 24B 高屈折率層、30, 40, 50, 60, 70 有機電界発光素子、31, 71 透明基板、32 発光機能層、32a 正孔注入層、32b 正孔輸送層、32c, 74 発光層、32d 電子輸送層、32e 電子注入層、33, 42, 77 対向電極、73 正孔輸送・注入層、75 正孔阻止層、76 電子輸送・注入層

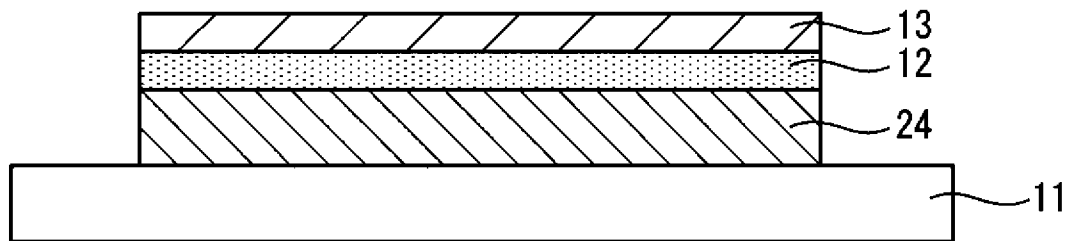
請求の範囲

- [請求項1] アルミニウムを50atm%以下含むAgAl層と、
前記AgAl層に隣接して設けられた銀を主成分とする導電層とを
備える
透明電極。
- [請求項2] 前記AgAl層と前記導電層との合計の厚さが15nm以下である
請求項1に記載の透明電極。
- [請求項3] 前記AgAl層の厚さが5nm以下である請求項2に記載の透明電
極。
- [請求項4] 前記導電層との間に前記AgAl層を挟持して設けられた高屈折率
層を備える請求項1に記載の透明電極。
- [請求項5] 前記高屈折率層が、二酸化チタン又は酸化ニオブから構成されてい
る請求項4に記載の透明電極。
- [請求項6] 請求項1に記載の透明電極を備える
電子デバイス。
- [請求項7] 有機材料から構成される発光層を備える請求項6記載の電子デバイ
ス。

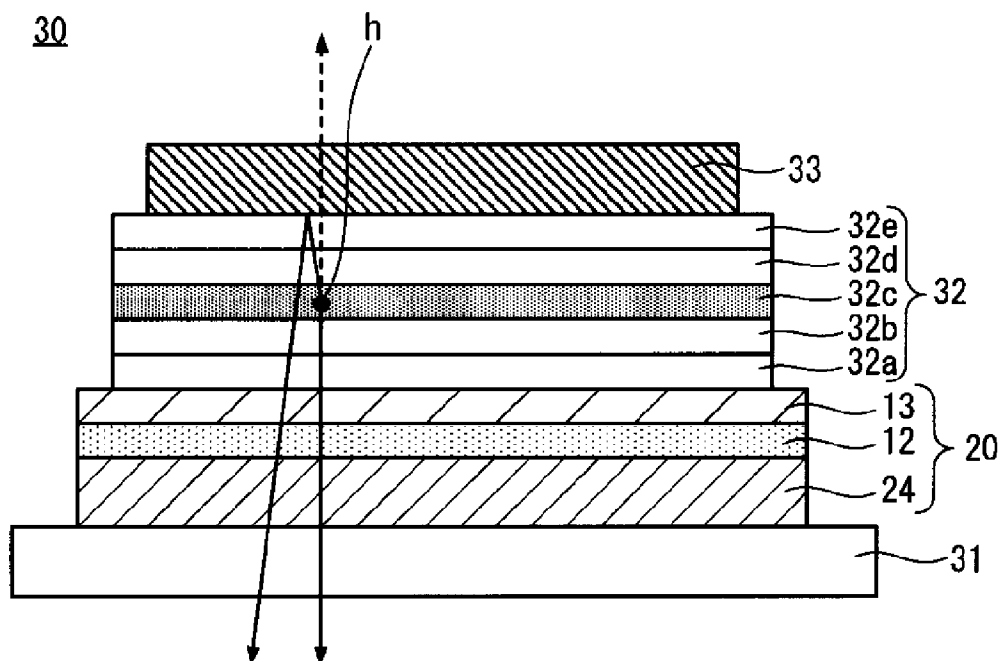
[図1]

FIG. 110

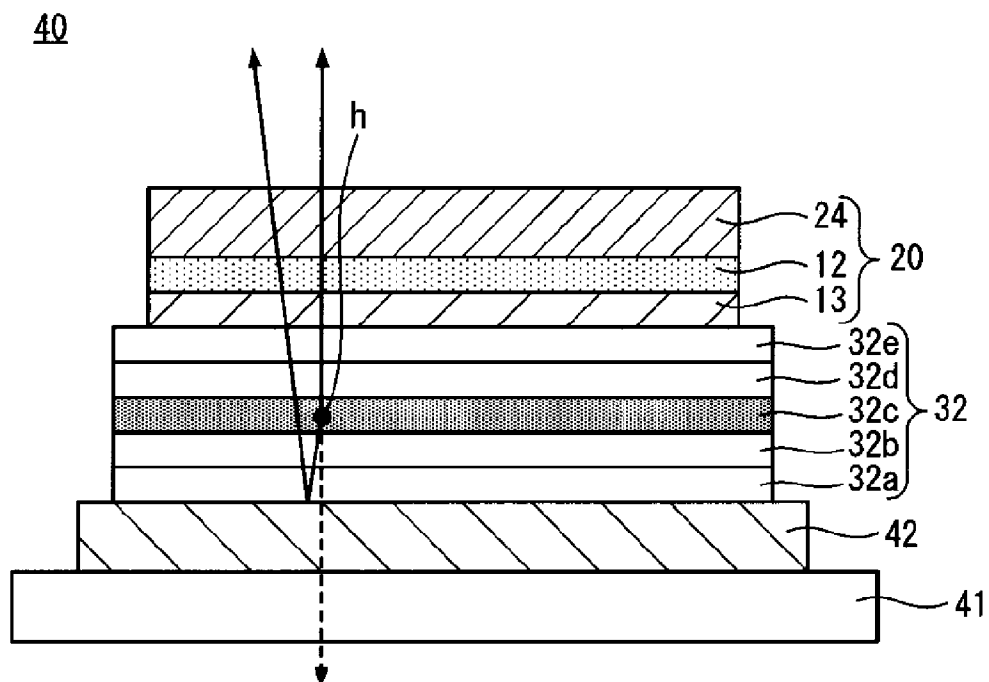
[図2]

FIG. 220

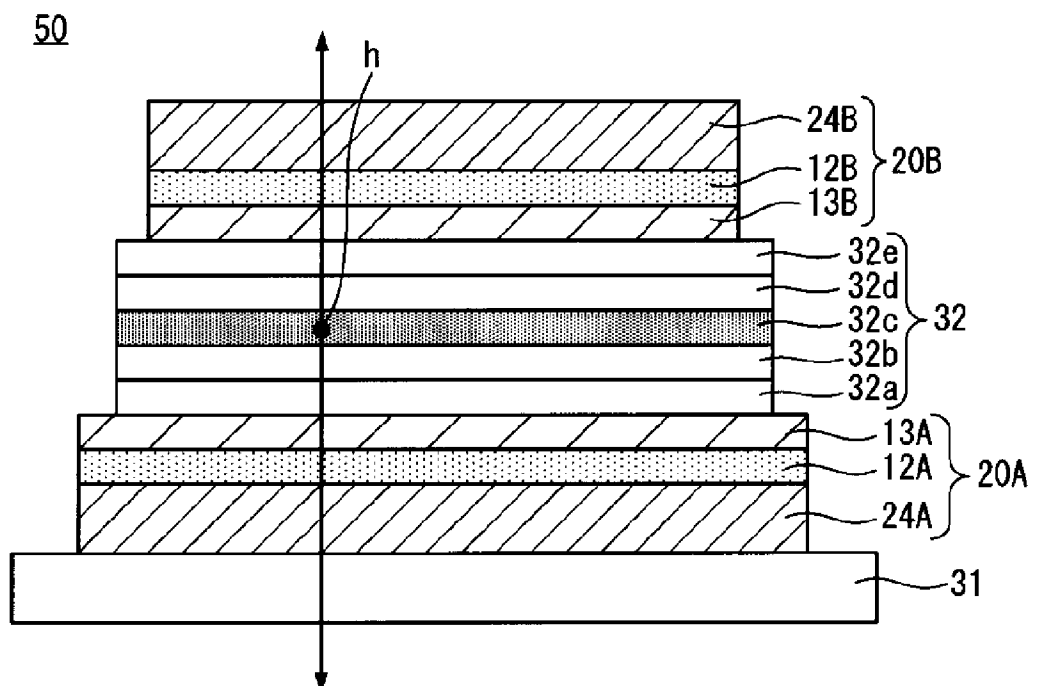
[図3]

FIG. 330

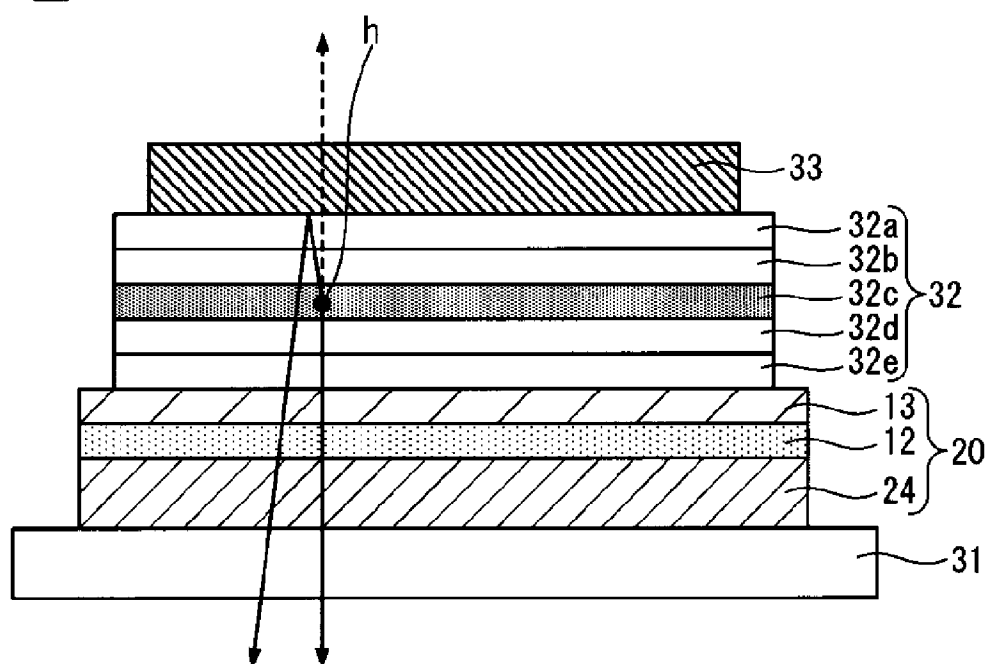
[図4]

FIG. 4

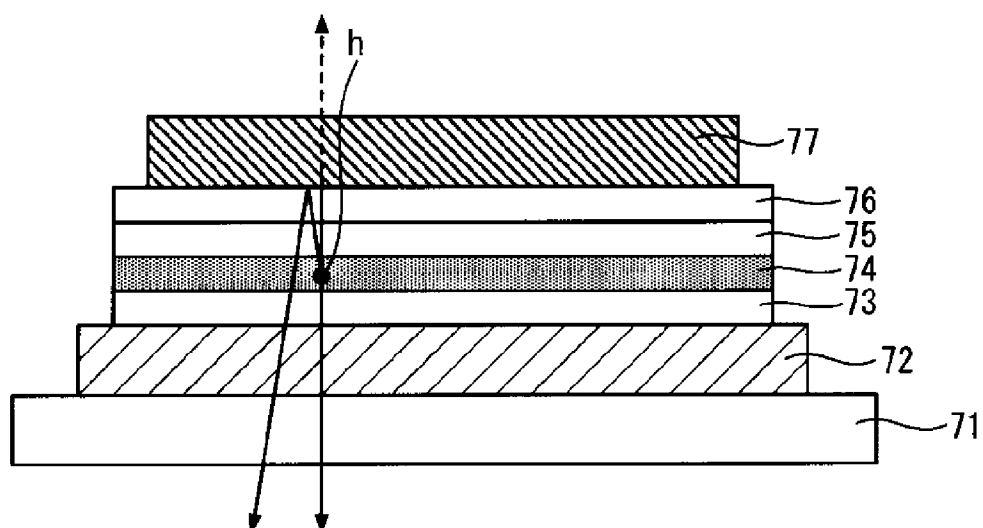
[図5]

FIG. 5

[図6]

FIG. 660

[図7]

FIG. 770

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/083582

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/28(2006.01)i, H01B5/14(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H05B33/28, H01B5/14, 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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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 2003-101052 A (Fuji Electric Co., Ltd.), 04 April 2003 (04.04.2003), entire text; all drawings (Family: none)	1-7
A	JP 2009-151963 A (Riken, Japan), 09 July 2009 (09.07.2009), entire text; all drawings (Family: none)	1-7
A	JP 2008-518446 A (The Regents of the University of California), 29 May 2008 (29.05.2008), entire text; all drawings & US 2008/0029147 A1 & EP 1805547 A & WO 2007/001429 A2 & CN 101438199 A & AU 2005333609 A	1-7

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
20 February, 2014 (20.02.14)

Date of mailing of the international search report
04 March, 2014 (04.03.14)

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（I P C））

Int.Cl. H05B33/28(2006.01)i, H01B5/14(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H05B33/28, H01B5/14, 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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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 2003-101052 A（富士電機株式会社）2003.04.04, 全文、全図（ファミリーなし）	1-7
A	JP 2009-151963 A（独立行政法人理化学研究所）2009.07.09, 全文、全図（ファミリーなし）	1-7

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

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 0 . 0 2 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

0 4 . 0 3 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

後藤 慎平

2 0

4 0 0 7

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

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2008-518446 A (ザ リージェンツ オブ ザ ユニバーシティー オブ カリフォルニア) 2008.05.29, 全文、全図 & US 2008/0029147 A1 & EP 1805547 A & WO 2007/001429 A2 & CN 101438199 A & AU 2005333609 A	1-7