

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2012-190880

(P2012-190880A)

(43) 公開日 平成24年10月4日(2012.10.4)

(51) Int.Cl. F I テーマコード (参考)
H O 1 L 51/50 (2006.01) H O 5 B 33/22 D 3 K 1 O 7
H O 5 B 33/14 A

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 78 頁)

(21) 出願番号	特願2011-51084 (P2011-51084)	(71) 出願人	000005968
(22) 出願日	平成23年3月9日 (2011.3.9)		三菱化学株式会社
			東京都千代田区丸の内一丁目1番1号
		(74) 代理人	100086911
			弁理士 重野 剛
		(72) 発明者	清水 渡
			神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番
			地 株式会社三菱化学科学技術研究センタ
			ー内
		(72) 発明者	水上 潤二
			神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番
			地 株式会社三菱化学科学技術研究センタ
			ー内
		Fターム(参考)	3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 BB04
			BB06 CC21 CC27 CC45 DD71
			DD73 DD78 DD79 DD80 DD87

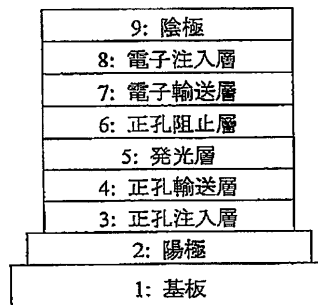
(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子用組成物及び有機電界発光素子

(57) 【要約】

【課題】正孔注入・輸送性材料と溶媒を含有する有機電界発光素子用組成物について、均一な成膜のための組成物溶液の均一さと、安定な塗布のための組成物の耐乾燥性とを両立する。

【解決手段】正孔注入・輸送性材料として、繰り返し単位に少なくともトリアリーールアミノ基を有する、重量平均分子量3000～1000000の高分子化合物を含み、溶媒として、(a) 沸点が240℃以上であり、アルキル基を有し、アリーール基を1つ有する化合物(溶媒(a))と、(b) 沸点が240℃以上であり、アリーール基を2つ以上有する化合物(溶媒(b))とを含有する。有機電界発光素子用組成物に含まれる溶媒(a)及び溶媒(b)の合計において、溶媒(a)及び溶媒(b)に含まれる芳香環を構成する炭素原子の合計数が、溶媒(a)及び溶媒(b)に含まれる脂肪族炭化水素基を構成する炭素原子の合計数に対して、2.7を超える。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

有機電界発光素子の正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくとも 1 層を形成するための有機電界発光素子用組成物であって、

正孔注入・輸送性材料と溶媒とを含有し、

前記正孔注入・輸送性材料が、繰り返し単位に少なくともトリアリールアミノ基を有する、重量平均分子量 3000～1000000 の高分子化合物であり、

前記溶媒として、(a) 沸点が 240℃以上であり、アルキル基を有し、アリール基を 1 つ有する化合物（以下「溶媒 (a)」と称す。）と、(b) 沸点が 240℃以上であり、アリール基を 2 つ以上有する化合物（以下「溶媒 (b)」と称す。）とを含有し、

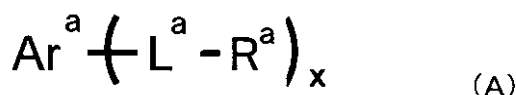
10

有機電界発光素子用組成物に含まれる溶媒 (a) 及び溶媒 (b) の合計において、溶媒 (a) 及び溶媒 (b) に含まれる芳香環を構成する炭素原子の合計数が、溶媒 (a) 及び溶媒 (b) に含まれる脂肪族炭化水素基を構成する炭素原子の合計数に対して、2.7 を超えることを特徴とする有機電界発光素子用組成物。

【請求項 2】

前記溶媒 (a) が下記式 (A) で表される化合物であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子用組成物。

【化 1】



20

(式中、 Ar^a はアリール基を表し、 R^a は置換基を有していても良い炭素数 1～8 のアルキル基を表し、 L^a は、単結合、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{C}(\text{O})-$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{O}-$ 、 $-\text{OC}(\text{O})-$ 、又は $-\text{OC}(\text{O})\text{O}-$ のいずれかを表す。

x は 1～3 の自然数で、 x が 2 以上の場合、複数の L^a と R^a は互いに同一であってもよく、異なってもよい。)

【請求項 3】

前記溶媒 (b) が下記式 (B) で表される化合物であることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の有機電界発光素子用組成物。

30

【化 2】



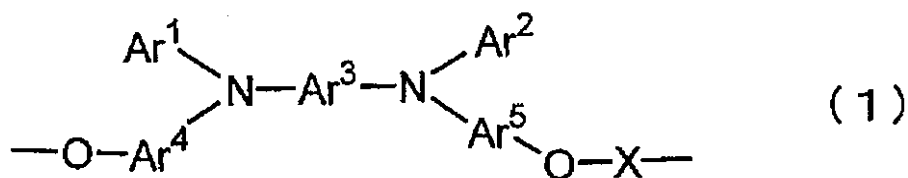
(式中、 Ar^{b1} 、 Ar^{b2} は、各々独立に、置換基を有していてもよいアリール基を表し、 L^b は、単結合、アルキレン基、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{C}(\text{O})-$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{O}-$ 、又は $-\text{OC}(\text{O})\text{O}-$ のいずれかを表す。)

40

【請求項 4】

前記高分子化合物が、下記式 (1) で表される繰り返し単位を有することを特徴とする請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子用組成物。

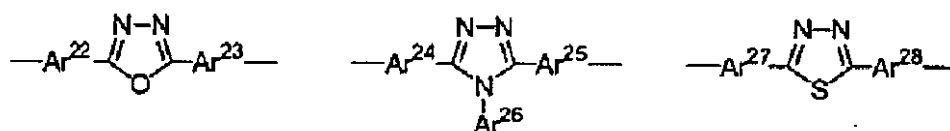
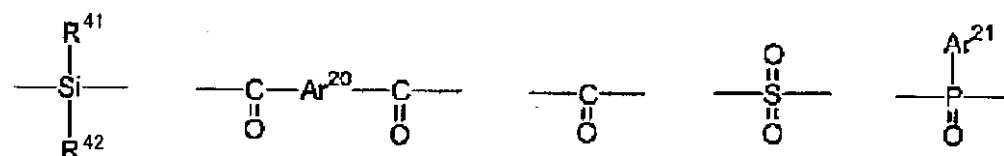
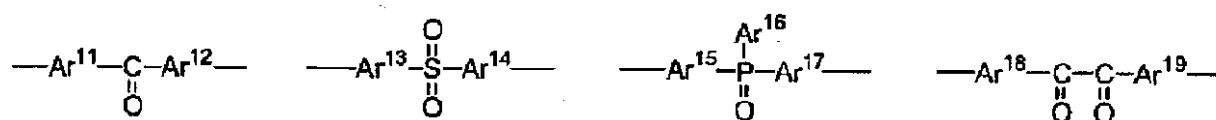
【化 3】



(式中、 Ar^1 および Ar^2 は各々独立して、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基、または置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表す。 $\text{Ar}^3 \sim \text{Ar}^5$ は、各々独立して、置換基を有していてもよい2価の芳香族炭化水素基、または置換基を有していてもよい2価の芳香族複素環基を表す。 X は、下記の連結基群 X' の中から選ばれる連結基を表す。)

<連結基群 X' >

【化 4】

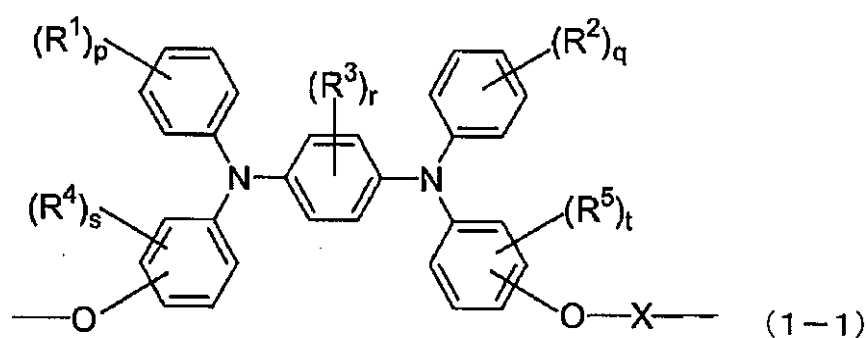


(式中、 $\text{Ar}^{11} \sim \text{Ar}^{28}$ は、各々独立して、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基または置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表す。 R^{41} および R^{42} は、各々独立して、水素原子または任意の置換基を表す。)

【請求項 5】

前記式(1)が下記式(1-1)で表されることを特徴とする請求項4に記載の有機電界発光素子用組成物。

【化 5】



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^5$ は各々独立して任意の置換基を表す。 p 及び q は、各々独立して0～5

10

20

30

40

50

の整数を表す。r, s 及び t は各々独立して 0 ~ 4 の整数を表す。X は式 (1) におけるものと同義である。)

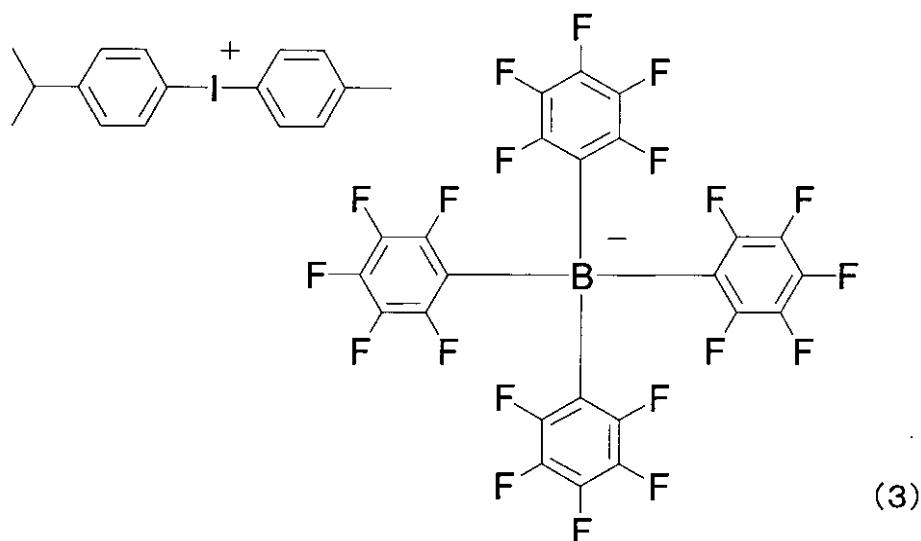
【請求項 6】

電子受容性化合物を含有することを特徴とする請求項 1 乃至 5 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子用組成物。

【請求項 7】

該電子受容性化合物が、下記式 (3) で表されることを特徴とする請求項 6 に記載の有機電界発光素子用組成物。

【化 6】



【請求項 8】

基板上に、少なくとも陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層及び陰極を積層した有機電界発光素子において、前記正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくとも 1 層が、請求項 1 乃至 7 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子用組成物を用いた湿式製膜法により形成されたことを特徴とする有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機電界発光素子の正孔注入層及び／又は正孔輸送層を形成するために用いられる有機電界発光素子用組成物に関する。

本発明はまた、この有機電界発光素子用組成物を用いて湿式成膜法により形成された正孔注入層及び／又は正孔輸送層を有する有機電界発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、有機薄膜を用いた電界発光素子（有機電界発光素子）の開発が行われている。有機電界発光素子における有機薄膜の形成方法としては、真空蒸着法と湿式成膜法が挙げられる。

このうち、真空蒸着法は積層化が可能であるため、陽極及び／又は陰極からの電荷注入の改善、励起子の発光層封じ込めが容易であるという利点を有する。

【0003】

一方、湿式成膜法は真空プロセスが要らず、大面積化が容易で、1つの層（塗布液）に様々な機能をもった複数の材料を混合して入れることが容易である等の利点がある。

湿式成膜法で有機層を形成した例として、特許文献 1 があり、特許文献 1 には、電荷輸送用組成物に用いられる各種の溶媒や、安息香酸エチルを溶媒として用いた正孔注入層用組成物が開示されている。しかし、特許文献 1 に開示されるトルエンやキシレン、あるいは

は安息香酸エチルといった、沸点が240℃に満たない溶媒を用いた組成物には、塗布の際、とりわけノズルを用いた塗布の際、乾燥によりノズル近傍で溶質が濃縮されたり析出したりして、塗布工程の歩留まりが下がる欠点があった。また、特許文献1には、沸点が250℃である安息香酸n-ブチル等も溶媒として用いられる旨記載があるが、例えばトルエンやキシレン、安息香酸エチルといった低沸点溶媒に比べると、組成物に用いられる高分子化合物を溶解させる度合いが低く、このために均一な成膜が困難であるなど、実用上の課題があった。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

10

【特許文献1】特開2010-98306号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明者らは、上記実情に鑑み、正孔注入・輸送性材料と溶媒を含有する有機電界発光素子用組成物について、均一な成膜のための組成物溶液の均一さ、即ち、高分子化合物の良好な均一溶解性と、安定な塗布のための組成物の耐乾燥性とを両立することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

20

本発明者らは鋭意検討した結果、溶媒として特定の条件を満たす少なくとも2種の溶媒を用いた有機電界発光素子用組成物であれば、上記課題を解決しうることを見出し、本発明に至った。

【0007】

即ち、本発明の第1の要旨は、有機電界発光素子の正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくとも1層を形成するための有機電界発光素子用組成物であって、正孔注入・輸送性材料と溶媒とを含有し、前記正孔注入・輸送性材料が、繰り返し単位に少なくともトリアリールアミノ基を有する、重量平均分子量3000~10000000の高分子化合物であり、前記溶媒として、(a)沸点が240℃以上であり、アルキル基を有し、アリール基を1つ有する化合物（以下「溶媒(a)」と称す。）と、(b)沸点が240℃以上であり、アリール基を2つ以上有する化合物（以下「溶媒(b)」と称す。）とを含有し、

30

有機電界発光素子用組成物に含まれる溶媒(a)及び溶媒(b)の合計において、溶媒(a)及び溶媒(b)に含まれる芳香環を構成する炭素原子の合計数が、溶媒(a)及び溶媒(b)に含まれる脂肪族炭化水素基を構成する炭素原子の合計数に対して、2.7を超えることを特徴とする有機電界発光素子用組成物、に存する。

【0008】

また、本発明の第2の要旨は、基板上に、少なくとも陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層及び陰極を積層した有機電界発光素子において、前記正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくとも1層が、上記本発明の有機電界発光素子用組成物を用いた湿式製膜法により形成されたことを特徴とする有機電界発光素子、に存する。

40

【発明の効果】

【0009】

本発明の有機電界発光素子用組成物は、組成物が均一な溶液であるので均一な製膜が可能であり、得られる有機電界発光素子は、短絡やダークスポットが生じず、駆動寿命が長い。更に本発明の有機電界発光素子用組成物は、良好な耐乾燥性を有するので、安定した塗布操作を可能にする。

【0010】

本発明の有機電界発光素子用組成物を用いて得られる本発明の有機電界発光素子は、フラットパネル・ディスプレイ（例えばOAコンピュータ用や壁掛けテレビ）や面発光体としての特徴を生かした光源（例えば、複写機の光源、液晶ディスプレイや計器類のバック

50

ライト光源)、表示板、標識灯への応用が考えられ、その技術的価値は高いものである。

【図面の簡単な説明】

【0011】

【図1】本発明の有機電界発光素子の構造の一例を模式的に示す断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0012】

以下に本発明の有機電界発光素子用組成物及び有機電界発光素子の実施態様を詳細に説明するが、以下に記載する構成要件の説明は、本発明の実施態様の一例(代表例)であり、本発明はその要旨を超えない限り、これらの内容に特定されない。

【0013】

[有機電界発光素子用組成物]

本発明の有機電界発光素子用組成物は、有機電界発光素子の正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくとも1層を形成するための有機電界発光素子用組成物であって、正孔注入・輸送性材料と溶媒とを含有し、前記正孔注入・輸送性材料が、繰り返し単位に少なくともトリアリーールアミノ基を有する、重量平均分子量3000~10000000の高分子化合物であり、前記溶媒として、(a)沸点が240℃以上であり、アルキル基を有し、アリーール基を1つ有する化合物(以下「溶媒(a)」と称す。)と、(b)沸点が240℃以上であり、アリーール基を2つ以上有する化合物(以下「溶媒(b)」と称す。)とを含有し、有機電界発光素子用組成物に含まれる溶媒(a)及び溶媒(b)の合計において、溶媒(a)及び溶媒(b)に含まれる芳香環を構成する炭素原子の合計数が、溶媒(a)及び溶媒(b)に含まれる脂肪族炭化水素基を構成する炭素原子の合計数に対して、2.7を超えることを特徴とする。

【0014】

なお、以下において、芳香環を構成する炭素原子を「芳香族炭素」と称し、脂肪族炭化水素基を構成する炭素原子を「脂肪族炭素」と称す。また、溶媒(a)と溶媒(b)に含まれる芳香族炭素の合計数と溶媒(a)と溶媒(b)に含まれる脂肪族炭素の合計数との比を「ArC/AlC比」と称す。

【0015】

なお、上記の脂肪族炭化水素基は、飽和炭化水素基でも不飽和炭化水素基でもよいが、飽和炭化水素基であることが好ましい。

また、本発明の有機電界発光素子用組成物は、更に電子受容性化合物を含有することが好ましい。

【0016】

<溶媒(a)>

本発明の有機電界発光素子用組成物に含有される溶媒(a)は、沸点が240℃以上であり、アルキル基を有し、アリーール基を1つ有する化合物である。

溶媒(a)の沸点が250℃未満であると、組成物の耐乾燥性が悪くなる。溶媒(a)の沸点は、好ましくは245℃以上、より好ましくは250℃以上である。ただし、溶媒(a)の沸点が過度に高いと有機電界発光素子の製造時、組成物付与後の乾燥に時間を要することから、溶媒(a)の沸点は、好ましくは400℃以下、より好ましくは350℃以下である。

【0017】

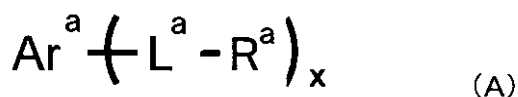
溶媒(a)は、後述のArC/AlC比を満たすために、1つ又は2つ以上のアルキル基と、1つのアリーール基を有する。

【0018】

溶媒(a)は上記条件を満たす限りにおいて特に制限はないが、好ましくは下記式(A)で表される化合物が好適に用いられる。

【0019】

【化 1】



【0020】

(式中、 Ar^a はアリール基を表し、 R^a は置換基を有していても良い炭素数 1～8 のアルキル基を表し、 L^a は、単結合、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{C}(\text{O})-$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{O}-$ 、 $-\text{OC}(\text{O})-$ 、又は $-\text{OC}(\text{O})\text{O}-$ のいずれかを表す。

10

x は 1～3 の自然数で、 x が 2 以上の場合、複数の L^a と R^a は互いに同一であってもよく、異なってもよい。)

【0021】

式 (A) において、 Ar^a で表されるアリール基は、炭素数 6 以上、20 以下のものが好ましく、炭素数 10 以下のものが更に好ましく、フェニル基が特に好ましい。

R^a のアルキル基は、直鎖でも分枝していてもよい。 R^a としては炭素数 1～6 のものが好ましく、4 以下のものが更に好ましく、2 以下のものが更に好ましい。

R^a のアリール基が有していてもよい置換基としてはハロゲン原子、炭素数 1～4 のアルコキシ基、炭素数 1～4 のアルキルカルボニル基、炭素数 1～4 のアルキルオキシカルボニル基、炭素数 1～4 のアルキルカルボニルオキシ基が好ましく、炭素数 1～4 のアルキルオキシ基、炭素数 1～4 のアルキルオキシカルボニル基がより好ましい。

20

R^a が置換基を有する場合、その置換基の数は特に制限はないが、通常 3 以下、好ましくは 2 以下である。

【0022】

L^a は、単結合、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{O}-$ 、又は $-\text{OC}(\text{O})-$ が好ましく、単結合又は $-\text{C}(\text{O})\text{O}-$ がより好ましい。

a は、2 以下であることが好ましく、1 であることがより好ましい。

【0023】

溶媒 (a) としては、例えば、後述の本発明の有機電界発光素子用組成物に含まれる有機溶媒のうち、上記条件を満たすものを用いることができるが、好ましくは安息香酸 n -ブチル、安息香酸アミル、安息香酸イソアミル、酢酸-2-フェノキシエチルが挙げられる。

30

【0024】

溶媒 (a) は、本発明の ArC/AlC 比を満たす限りにおいて、1 種を単独で用いてもよく、2 種以上を混合して用いてもよい。

【0025】

<溶媒 (b)>

本発明の有機電界発光素子用組成物に含有される溶媒 (b) は、沸点が 240℃ 以上であり、アリール基を 2 つ以上有する化合物である。

溶媒 (b) の沸点が 240℃ 未満であると、組成物の耐乾燥性が悪くなる。溶媒 (b) の沸点は、好ましくは 250℃ 以上、より好ましくは 260℃ 以上である。ただし、溶媒 (b) の沸点が過度に高いと有機電界発光素子製造時、組成物付与後の乾燥に時間を要することから、溶媒 (b) の沸点は、好ましくは 400℃ 以下、より好ましくは 350℃ 以下である。

40

【0026】

溶媒 (b) は、後述の ArC/AlC 比を満たすために、2 つ以上のアリール基を有する。

【0027】

溶媒 (b) は上記条件を満たす限りにおいて特に制限はないが、好ましくは下記式 (B) で表される化合物が好適に用いられる。

50

【0028】

【化2】



【0029】

(式中、 Ar^{b1} 、 Ar^{b2} は、各々独立に、置換基を有していてもよいアリール基を表し、 L^b は、単結合、アルキレン基、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{C}(\text{O})-$ 、 $-\text{C}(\text{O})\text{O}-$ 、又は $-\text{OC}(\text{O})\text{O}-$ のいずれかを表す。)

10

【0030】

式(B)において、 Ar^{b1} 、 Ar^{b2} で表されるアリール基は、各々独立に、炭素数6以上、20以下のものが好ましく、炭素数10以下のものが更に好ましく、フェニル基が特に好ましい。

Ar^{b1} 、 Ar^{b2} のアリール基が有していてもよい置換基としては、各々独立に、ハロゲン原子、炭素数1～2のアルキル基、炭素数1～2のアルコキシ基、炭素数1～2のアルキルカルボニル基、炭素数1～2のアルキルオキシカルボニル基、炭素数1～2のアルキルカルボニルオキシ基、フェニル基が好ましく、炭素数1～2のアルキル基、炭素数1～2のアルキルオキシ基がより好ましい。

20

Ar^{b1} 、 Ar^{b2} が置換基を有する場合、その置換基の数は特に制限はないが、通常3以下、好ましくは2以下である。

【0031】

L^b は、単結合、炭素数1～2のアルキレン基、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{C}(\text{O})-$ 、又は $-\text{C}(\text{O})\text{O}-$ が好ましく、メチレン基又は $-\text{O}-$ がより好ましい。

【0032】

溶媒(b)としては、例えば、後述の本発明の有機電界発光素子用組成物に含まれる有機溶媒のうち、上記条件を満たすものを用いることができるが、好ましくはジフェニルエーテル、ジフェニルメタン、ベンゾフェノン、安息香酸フェニルが挙げられる。

【0033】

溶媒(b)は、本発明の ArC/AlC 比を満たす限りにおいて、1種を単独で用いてもよく、2種以上を混合して用いてもよい。

30

【0034】

< ArC/AlC 比>

本発明の有機電界発光素子用組成物は、上述の溶媒(a)と溶媒(b)とを、 ArC/AlC 比が2.7を超えるような割合で含むことを特徴とする。

【0035】

本発明に係る ArC/AlC 比の計算方法について以下に説明する。

有機電界発光素子用組成物中の溶媒(a)の含有量を「Ga」(重量基準)、溶媒(b)の含有量を「Gb」(重量基準)とし、溶媒(a)の1分子中の芳香族炭素の数を「ArCa」、脂肪族炭素の数を「AlCa」、分子量を「Wa」とし、溶媒(b)の1分子中の芳香族炭素の数を「ArCb」、脂肪族炭素の数を「AlCb」、分子量を「Wb」で表した場合、有機電界発光素子用組成物中の溶媒(a)と溶媒(b)のモル比は

40

$$\text{溶媒(a)} : \text{溶媒(b)} = \text{Ga} / \text{Wa} : \text{Gb} / \text{Wb}$$

で求められる。

溶媒(a)と溶媒(b)の合計中の芳香族炭素の数：ArCは、

$$\text{溶媒(a)} \rightarrow \text{ArCa} \times \text{Ga} / \text{Wa}$$

$$\text{溶媒(b)} \rightarrow \text{ArCb} \times \text{Gb} / \text{Wb}$$

より、

$$\text{ArC} = \text{ArCa} \times \text{Ga} / \text{Wa} + \text{ArCb} \times \text{Gb} / \text{Wb}$$

50

で算出される。

溶媒 (a) と溶媒 (b) の合計中の脂肪族炭素の数: A l C は、

溶媒 (a) $\rightarrow$ A l C a $\times$ G a $\div$ W a

溶媒 (b) $\rightarrow$ A l C b $\times$ G b $\div$ W b

より、

A l C = A l C a $\times$ G a $\div$ W a + A l C b $\times$ G b $\div$ W b

で算出される。

よって、A r C $\div$ A l C 比は、下記式で算出することができる。

【0036】

【数1】

10

$$\text{ArC} / \text{AlC} = \frac{\text{ArCa} \times \text{Ga} / \text{Wa} + \text{ArCb} \times \text{Gb} / \text{Wb}}{\text{AlCa} \times \text{Ga} / \text{Wa} + \text{AlCb} \times \text{Gb} / \text{Wb}}$$

【0037】

本発明において、A r C $\div$ A l C 比は、好ましくは2.9以上、より好ましくは3.0以上であり、その上限としては100以下が好ましく、50以下がより好ましく、20以下が更に好ましい。

【0038】

20

A r C $\div$ A l C 比が2.7以下であると、本発明の有機電界発光素子用組成物に含まれる正孔注入・輸送性材料である高分子化合物の溶解性が不十分となり、均一性膜が可能な組成物とすることが困難となる。

即ち、本発明では共に高沸点の溶媒 (a) と溶媒 (b) を併用することにより耐乾燥性を高めた上で、アリール基を多く有する溶媒 (b) を用いることにより、繰り返し単位に少なくともトリアリールアミノ基を有する、重量平均分子量3000~1000000の高分子化合物の溶解性を高めて組成物の均一性を高める。

このため、溶媒 (a) と溶媒 (b) とを上記 A r C $\div$ A l C 比を満たすように併用するが、A r C $\div$ A l C 比が大き過ぎると組成物の粘度が過度に上昇する傾向があるため、A r C $\div$ A l C 比は上記上限値以下とすることが好ましい。

30

【0039】

<溶媒 (a) と溶媒 (b) の含有量>

本発明の有機電界発光素子用組成物において、溶媒 (a) と溶媒 (b) の合計の含有量は、組成物中において、50重量%以上99%以下であることが好ましく、75重量%以上98%以下がより好ましく、90%以上がより好ましく、95%以上が特に好ましい。溶媒 (a) と溶媒 (b) の含有量が上記下限値以上であることにより、組成物の均一性が高められるが、組成物に含有させる正孔注入・輸送性材料等の固形分濃度を確保するために、組成物中の溶媒 (a) と溶媒 (b) の合計含有量は上記上限値以下とする。

【0040】

40

なお、本発明の有機電界発光素子用組成物において、溶媒 (a) 及び溶媒 (b) を含む全有機溶媒の含有量についても50重量%以上99%以下であることが好ましく、75重量%以上98%以下がより好ましく、90%以上がより好ましく、95%以上が特に好ましく、本発明の有機電界発光素子用組成物中の全有機溶媒の80重量%以上、特に90~100重量%が溶媒 (a) と溶媒 (b) であることが、本発明の効果を有効に得る上で好ましい。

【0041】

<正孔注入・輸送性材料>

本発明の有機電界発光素子用組成物に含まれる正孔注入・輸送性材料は、繰り返し単位に少なくともトリアリールアミノ基を有する、重量平均分子量3000~1000000の高分子化合物（以下「芳香族アミン系ポリマー」と称す場合がある。）である。

50

【0042】

(分子量について)

本発明における芳香族アミン系ポリマーの重量平均分子量 (M_w) は、3000以上、また、100000以下であり、有機電界発光素子への使用に好適である。

【0043】

芳香族アミン系ポリマーの重量平均分子量が、上記範囲内であると湿式成膜時に、芳香族アミン系ポリマーの有機溶媒に対する溶解性が良好で、また均一な膜が形成しやすくなり、更に、不純物の高分子量化が起き難いため精製が容易で、工業的に不利益が生じ難くなる。

また重量平均分子量がこの下限値を下回ると、ガラス転移温度、融点及び気化温度が低下するため、耐熱性が著しく損なわれるおそれがある。

10

【0044】

この芳香族アミン系ポリマーを含む層を湿式成膜法により形成する場合には、溶解性、成膜性、耐熱性の点から、その重量平均分子量は100000以下が好ましく、60000以下がさらに好ましい。同様に、下限値としては5000以上が好ましく、10000以上がさらに好ましい。

また、本発明における芳香族アミン系ポリマーの数平均分子量 (M_n) は、通常2,500,000以下、好ましくは750,000以下、より好ましくは400,000以下であり、また通常500以上、好ましくは1,500以上、より好ましくは3,000以上である。

20

【0045】

さらに、本発明における芳香族アミン系ポリマーの分散度 (M_w/M_n) は、通常10以下、好ましくは2.5以下、より好ましくは2.0以下であり、好ましくは1.0以上、さらに好ましくは1.1以上、特に好ましくは1.2以上である。

上記範囲内であると、精製が容易であり、また芳香族アミン系ポリマーの有機溶媒に対する溶解性や電荷輸送能が良好であるため好ましい。

【0046】

本発明における重量平均分子量 (及び数平均分子量) はSEC (サイズ排除クロマトグラフィー) 測定により決定される。SEC測定では高分子量成分ほど溶出時間が短く、低分子量成分ほど溶出時間が長くなるが、分子量既知のポリスチレン (標準試料) の溶出時間から算出した校正曲線を用いて、サンプルの溶出時間を分子量に換算することによって、重量平均分子量 (及び数平均分子量) が算出される。

30

【0047】

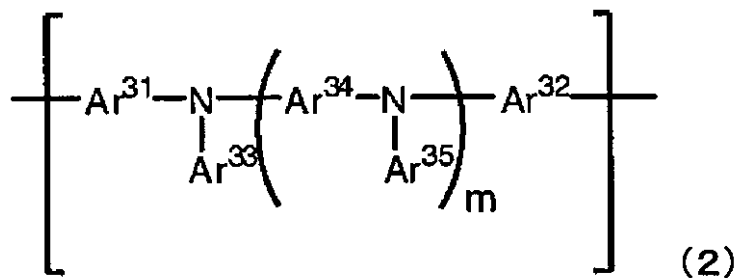
(好適な繰り返し単位について)

本発明の有機電界発光素子用組成物に含有される芳香族アミン系ポリマーは、下記式 (2) で表される繰り返し単位を含むポリマーであることが好ましい。

【0048】

【化3】

40



【0049】

(式中、mは0～3の整数を表し、

50

$\text{Ar}^{3\ 1}$ 、及び $\text{Ar}^{3\ 2}$ は、各々独立して、直接結合、2 価の、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基又は置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表し、 $\text{Ar}^{3\ 3} \sim \text{Ar}^{3\ 5}$ は、各々独立に、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基又は置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表す。 $\text{Ar}^{3\ 3}$ 及び $\text{Ar}^{3\ 5}$ は 1 価の基を、 $\text{Ar}^{3\ 4}$ は 2 価の基を示す。但し、 $\text{Ar}^{3\ 1}$ 及び $\text{Ar}^{3\ 2}$ が同時に、直接結合であることはない。)

【0050】

式 (2) 中、 $\text{Ar}^{3\ 1}$ 及び $\text{Ar}^{3\ 2}$ は、各々独立して、直接結合、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基、又は置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表し、 $\text{Ar}^{3\ 3} \sim \text{Ar}^{3\ 5}$ は、各々独立に、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基又は置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表す。

10

【0051】

置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基としては、例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ペリレン環、テトラセン環、ピレン環、ベンズピレン環、クリセン環、トリフェニレン環、アセナフテン環、フルオランテン環、フルオレン環などの、6 員環の単環又は 2～5 縮合環由来の基が挙げられる。

置換基を有していてもよい芳香族複素環基としては、例えばフラン環、ベンゾフラン環、チオフェン環、ベンゾチオフェン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサジアゾール環、インドール環、カルバゾール環、ピロロイミダゾール環、ピロロピラゾール環、ピロロピロール環、チエノピロール環、チエノチオフェン環、フロピロール環、フロフラン環、チエノフラン環、ベンゾイソオキサゾール環、ベンゾイソチアゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、トリアジン環、キノリン環、イソキノリン環、シノリン環、キノキサリン環、フェナントリジン環、ベンゾイミダゾール環、ペリミジン環、キナゾリン環、キナゾリノン環、アズレン環などの、5 又は 6 員環の単環又は 2～4 縮合環由来の基が挙げられる。

20

【0052】

溶媒に対する溶解性、及び耐熱性の点から、 $\text{Ar}^{3\ 1} \sim \text{Ar}^{3\ 5}$ は、各々独立に、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、トリフェニレン環、ピレン環、チオフェン環、ピリジン環、フルオレン環からなる群より選ばれる環由来の基が好ましい。

また、 $\text{Ar}^{3\ 1} \sim \text{Ar}^{3\ 5}$ としては、前記群から選ばれる 1 種又は 2 種以上の環を直接結合、又は $-\text{CH}=\text{CH}-$ 基により連結した基も好ましく、ビフェニル基及びターフェニル由来基、がさらに好ましい。

30

【0053】

前記置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基及び置換基を有していてもよい芳香族複素環基が有していてもよい置換基としては、例えば下記 (置換基群 Z) に記載の基が挙げられる。

【0054】

<置換基群 Z>

メチル基、エチル基等の好ましくは炭素数 1～24、更に好ましくは炭素数 1～12 のアルキル基；

40

ビニル基等の好ましくは炭素数 2～24、更に好ましくは炭素数 2～12 のアルケニル基；

エチニル基等の好ましくは炭素数 2～24、更に好ましくは炭素数 2～12 のアルキニル基；

メトキシ基、エトキシ基等の好ましくは炭素数 1～24、更に好ましくは炭素数 1～12 のアルコキシ基；

フェノキシ基、ナフトキシ基、ピリジルオキシ基等の好ましくは炭素数 4～36、更に好ましくは炭素数 5～24 のアリールオキシ基；

メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の好ましくは炭素数 2～24、更に好ましくは炭素数 2～12 のアルコキシカルボニル基；

50

ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等の好ましくは炭素数 2 ～ 24、更に好ましくは炭素数 2 ～ 12 のジアルキルアミノ基；

ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、N-カルバゾリル基等の好ましくは炭素数 10 ～ 36、更に好ましくは炭素数 12 ～ 24 のジアリールアミノ基；

フェニルメチルアミノ基等の好ましくは炭素数 6 ～ 36、更に好ましくは炭素数 7 ～ 24 のアリールアルキルアミノ基；

アセチル基、ベンゾイル基等の好ましくは炭素数 2 ～ 24、好ましくは炭素数 2 ～ 12 のアシル基；

フッ素原子、塩素原子等のハロゲン原子；

トリフルオロメチル基等の好ましくは炭素数 1 ～ 12、更に好ましくは炭素数 1 ～ 6 のハロアルキル基；

メチルチオ基、エチルチオ基等の好ましくは炭素数 1 ～ 24、更に好ましくは炭素数 1 ～ 12 のアルキルチオ基；

フェニルチオ基、ナフチルチオ基、ピリジルチオ基等の好ましくは炭素数 4 ～ 36、更に好ましくは炭素数 5 ～ 24 のアリールチオ基；

トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基等の好ましくは炭素数 2 ～ 36、更に好ましくは炭素数 3 ～ 24 のシリル基；

トリメチルシロキシ基、トリフェニルシロキシ基等の好ましくは炭素数 2 ～ 36、更に好ましくは炭素数 3 ～ 24 のシロキシ基；

シアノ基；

フェニル基、ナフチル基等の好ましくは炭素数 6 ～ 36、更に好ましくは炭素数 6 ～ 24 の芳香族炭化水素基；

チエニル基、ピリジル基等の好ましくは炭素数 3 ～ 36、更に好ましくは炭素数 4 ～ 24 の芳香族複素環基。

【0055】

上記各置換基は、さらに置換基を有していてもよく、その例としては前記置換基群 Z に例示した基が挙げられる。

上記各置換基は、さらに置換基を有していてもよく、その例としては前記置換基群 Z に例示した基が挙げられる。

$Ar^{31} \sim Ar^{35}$ における芳香族炭化水素基及び芳香族複素環基が有してもよい置換基の分子量としては、さらに置換した基を含めて 500 以下が好ましく、250 以下がさらに好ましい。

【0056】

溶媒に対する溶解性の点から、 $Ar^{31} \sim Ar^{35}$ における芳香族炭化水素基及び芳香族複素環基が有していてもよい置換基としては、各々独立に、炭素数 1 ～ 12 のアルキル基及び炭素数 1 ～ 12 のアルコキシ基が好ましい。

なお、m が 2 以上である場合、前記式 (2) で表される繰り返し単位は、2 個以上の Ar^{34} 及び Ar^{35} を有することになる。その場合、 Ar^{34} 同士及び Ar^{35} 同士は、各々、同じでもよく、異なってもよい。さらに、 Ar^{34} 同士、 Ar^{35} 同士は、各々互いに直接又は連結基を介して結合して環状構造を形成していてもよい。

【0057】

式 (2) における m は、0 以上、3 以下の整数を表す。

m は 0 であることが、架橋性ポリマーの、有機溶媒に対する溶解性及び成膜性が高められる点で好ましい。

また、m は 1 以上、3 以下であることが、ポリマーの正孔輸送能が向上する点で好ましい。

【0058】

(共役ポリマー)

本発明における芳香族アミン系ポリマーは、共役系の構造を有する繰り返し単位からなるため、十分な電荷輸送能を有し、また溶媒に対する十分な溶解性を有する点から、共役

10

20

30

40

50

ポリマーであることが好ましい。

より具体的には、前記式（２）で表される繰り返し単位からなるポリマーであることが好ましい。

【００５９】

（不溶化基）

また、本発明における芳香族アミン系ポリマーは、共役ポリマーである場合、積層が容易であり、また成膜時の表面平坦性に優れる点で、さらに不溶化基を有することが好ましい。つまり、本発明における芳香族アミン系ポリマーは、不溶化基を有する共役ポリマーであることが好ましい。

【００６０】

不溶化基とは、熱及び／又は光などの活性エネルギー線の照射により反応する基であり、反応後は反応前に比べて有機溶媒や水への溶解性を低下させる効果を有する基である。

本発明においては、不溶化基は、解離性基又は架橋性基であることが好ましい。

芳香族アミン系ポリマーは、置換基として不溶化基を含む基を有するが、不溶化基を有する位置は、前記式（２）で表される繰り返し単位中にあってもよく、また式（２）で表される繰り返し単位以外の部分、例えば、末端基に有していてもよい。

【００６１】

以下、解離性基を有する芳香族アミン系ポリマーを「解離性ポリマー」、また架橋性基を有する芳香族アミン系ポリマーを「架橋性ポリマー」と称する場合がある。

【００６２】

<解離性基>

解離性基とは、溶媒に対して可溶性を示す基であり、結合している基（例えば、炭化水素環）から７０℃以上で熱解離する基を表す。また、解離性基が解離することにより、ポリマーの溶媒への溶解度は低下する。

【００６３】

但し、解離後に、他の原子が結合する反応、例えば加水分解で解離する基などは除く。加水分解で解離する基は、解離後、分子内に活性プロトンを有することになる。この活性プロトンが素子中に存在すると、素子特性に影響する場合がある。

このような解離性基は、炭化水素環に結合し、該炭化水素環は極性基を有さない芳香族炭化水素環に縮合していることが好ましく、逆ディールスアルダー反応により熱解離する基であることがより好ましい。

【００６４】

また熱解離する温度は、好ましくは１００℃以上、さらに好ましくは１２０℃以上、また好ましくは３００℃以下、さらに好ましくは２４０℃以下である。

上記範囲内であると、ポリマーの合成が容易であり、また成膜時に化合物が分解するなどが起きにくい。

また特に、分子間のスタッキングを抑制する立体構造を有する基が可溶性に優れるため好ましい。化合物から解離性基が解離する反応の一例を下記に示す。

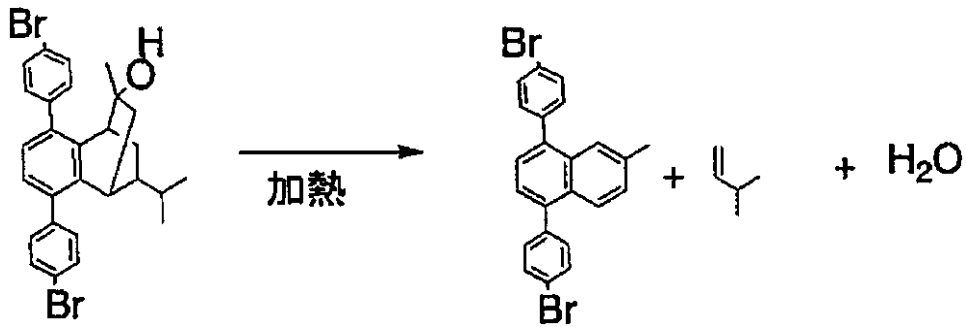
【００６５】

10

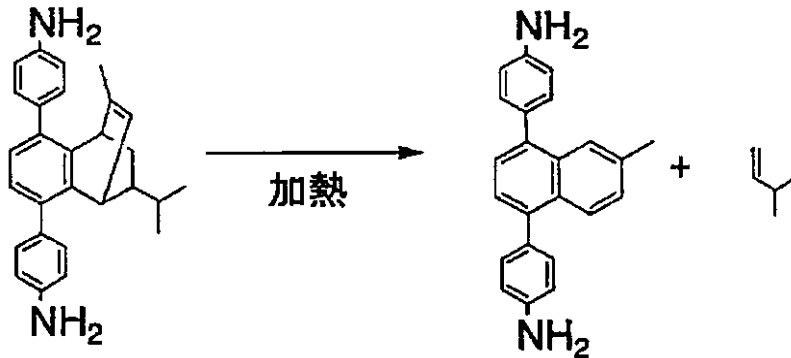
20

30

【化 4】



10



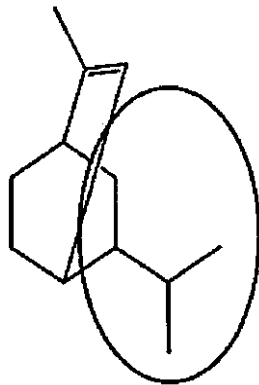
20

【0066】

尚、上記反応式の場合、解離性基は、以下に示す構造の丸枠で囲った部分である。

【0067】

【化 5】



30

【0068】

このような解離性基の解離の例としては、例えば脱スルフィニルアセトアミド (JACS, V124, No. 30, 2002, 8813 参照)、脱オレフィン、脱アルコール、脱アルキル (H. Kwart and K. King, Department of Chemistry, University of Delaware, Newark, Delaware 19771, p415-447 (1967), O. Diels and K. Alder, Ber., 62, 554 (1929) 及び M. C. Kloetzel, Org. Reactions, 4, 6 (1948) 参照)、脱1,3-ジオキソール (N. D. Field, J. Am. Chem. Soc., 83, 3504 (1961) 参照)、脱ジエン (R. Huisgen, M. Seidel, G. Wallbillich, and H. Knupfer, Tetrahedron, 17, 3 (1962) 参照)、

40

50

脱イソキサゾール (R. Huisgen and M. Christ, Angew. Chem. Intern. Ed. Engl., 5, 456 (1967) 参照)、脱トリアゾール (R. Kreher and J. Seubert, Z. Naturforsch., 20B, 75 (1965) 参照) 等が挙げられる。

【0069】

上記の中で特に、解離性基が結合する炭化水素環が、エテノ基またはエタノ基を含む環であることが、解離性基がより安定であり、合成がし易い点で好ましい。

このような解離性基は、加熱処理前において、その嵩高い分子構造から、分子間のスタッキングを防止したり、有機塗布溶媒に対して該ポリマーが良好な溶解性を有するものとする事ができる。また、加熱処理によって該ポリマーから解離性基が解離するため、加熱後の化合物の溶媒への溶解性を著しく抑制することができ、該化合物を含む有機層に耐有機溶媒塗布性を付与することが出来る。したがって、本発明における解離性ポリマーを用いて形成された有機層上に、さらに湿式成膜法によって有機薄膜を積層して形成することが容易となる。

【0070】

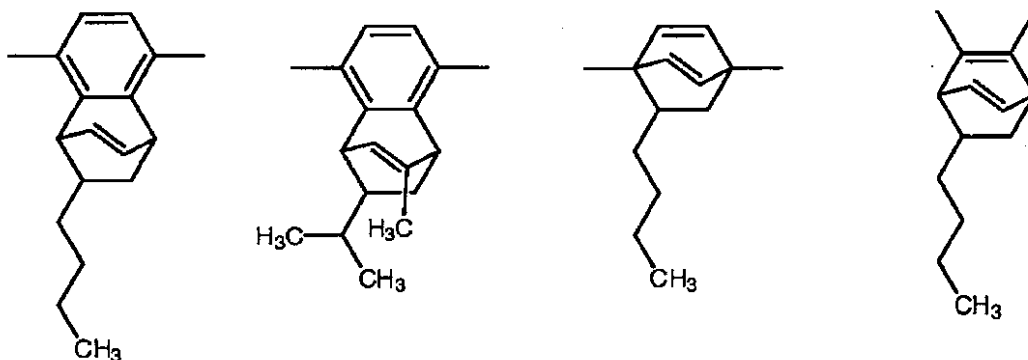
解離性基を含む基の具体例は、以下の通りであるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

解離性基を含む基が2価の基である場合の具体例は、以下の<2価の解離性基を含む基群A>の通りである。

【0071】

<2価の解離性基を含む基群A>

【化6】



【0072】

解離性基が1価の基である場合の具体例は、以下の<1価の解離性基群B>の通りである。

【0073】

<1価の解離性基を含む基群B>

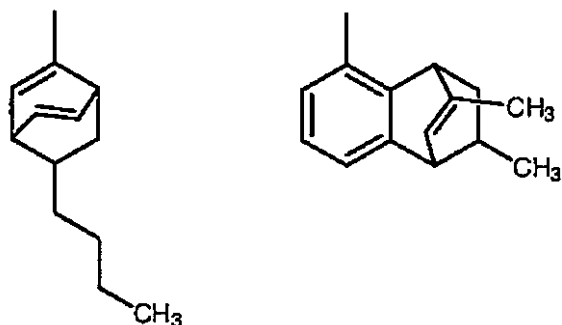
10

20

30

40

【化 7】



10

【0074】

<繰り返し単位の配列および割合等>

解離性基を有する共役ポリマーは、その構造中に解離性基を有するものであれば、その繰り返し単位等の構造は特に制限はないが、繰り返し単位内に芳香族環を有し、この芳香族環に縮合した炭化水素環に上記解離性基が結合していることが好ましい。

また中でもエテノ基、あるいは、エタノ基を含む解離性基が結合している部分構造を有する繰り返し単位を含む解離性基を有する共役ポリマーであることが、成膜性が優れる点から好ましい。

20

【0075】

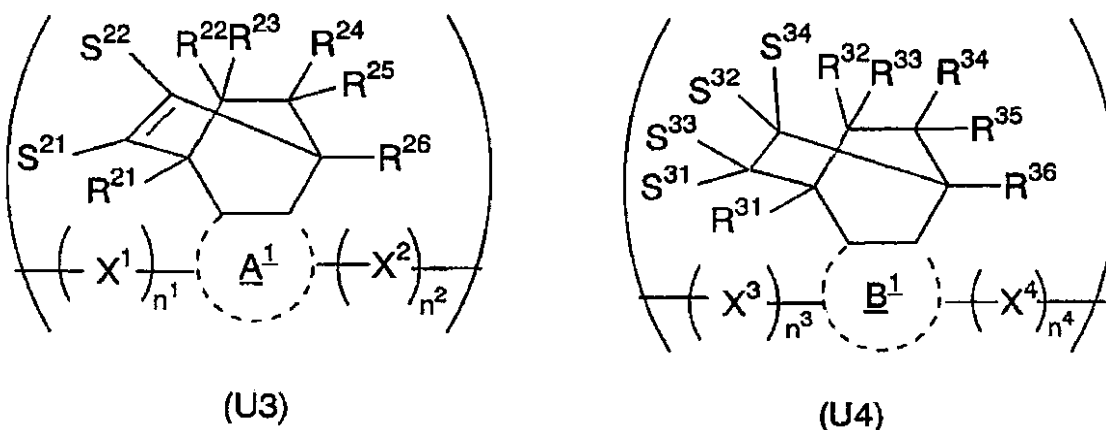
尚、エテノ基又はエタノ基は、炭化水素環に含まれていることが好ましく、該炭化水素環はさらに6員環であることが好ましい。

本発明における解離性基を有する共役ポリマーは、解離性基が結合している部分構造を有する繰り返し単位として、下記化学式（U3）または（U4）で表される部分構造を有する繰り返し単位を含むことが好ましい。この場合、ポリマー鎖中の繰り返し単位（U3）あるいは（U4）の含有量は、好ましくは10モル%以上、更に好ましくは30モル%以上である。

【0076】

【化 8】

30



40

【0077】

（式（U3）中、環A¹は芳香族環を表す。前記芳香族環は置換基を有していてもよい。また、前記置換基同士が直接または2個の連結基を介して環を形成していてもよい。

S²¹、S²²、R²¹～R²⁶は、それぞれ独立に、水素原子、水酸基、置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環基、置換基を有していてもよい芳香族複素環基、置換基を有していてもよいアラルキル基、置換基を有していてもよいアルコキシ基、置換基を有していてもよいアリーールオキシ基、置換基を有し

50

ていてもよいアシル基、置換基を有していてもよいアルケニル基、置換基を有していてもよいアルキニル基、置換基を有していてもよいアシルオキシ基、置換基を有していてもよいアリールアミノ基、置換基を有していてもよいヘテロアリールアミノ基または置換基を有していてもよいアシルアミノ基を表す。

X^1 及び X^2 は、それぞれ独立に、置換基を有していてもよい炭素数 6 以上 50 以下の 2 価の芳香族炭化水素環基、または置換基を有していてもよい炭素数 5 以上 50 以下の 2 価の芳香族複素環基を表す。

式 (U 4) 中、環 B^1 は芳香族環を表す。前記芳香族環は置換基を有していてもよい。また、前記置換基同士が直接または 2 価の連結基を介して環を形成していてもよい。 $S^{31} \sim S^{34}$ 、 $R^{31} \sim R^{36}$ 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、上記 S^{21} 、 S^{22} 、 $R^{21} \sim R^{26}$ 、 X^3 及び X^4 として示したものと同様である。 $n^1 \sim n^4$ はそれぞれ独立に、0～5 の整数を表す。) 10

【0078】

化学式 (U 3) 及び (U 4) 中における、環 A^1 及び環 B^1 は、それぞれ解離性基が結合する芳香族環を表し、芳香族炭化水素環であってもよく、芳香族複素環であってもよいが、電気化学的安定性に優れるため、電荷が局在化しにくいため、芳香族炭化水素環であることが好ましい。また、該芳香族環は置換基を有していてもよい。また、該置換基同士が直接または 2 価の連結基を介して環を形成していてもよい。

【0079】

環 A^1 及び B^1 が、芳香族炭化水素環である場合に、該芳香族炭化水素環の核炭素数は通常 6 以上である。また通常 40 以下であり、好ましくは 30 以下、より好ましくは 20 以下である。また、環 A^1 及び B^1 が、芳香族複素環である場合に、該芳香族複素環の核炭素数は、通常 3 以上、好ましくは 4 以上、より好ましくは 5 以上である。また通常 50 以下であり、好ましくは 30 以下、より好ましくは 20 以下である。 20

【0080】

該芳香族炭化水素環としては、例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ペリレン環、テトラセン環、ピレン環、ベンゾピレン環、クリセン環、ベンゾクリセン環、トリフェニレン環、フルオランテン環、フルオレン環等が挙げられる。

上記の中でも環 A^1 および環 B^1 が、それぞれ独立に、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環およびテトラセン環からなる群から選ばれることが好ましい。 30

【0081】

また芳香族複素環としては、フラン環、ベンゾフラン環、チオフェン環、ベンゾチオフェン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサジアゾール環、インドール環、カルバゾール環、ピロロイミダゾール環、ピロロピラゾール環、ピロロピロール環、チエノピロール環、チエノチオフェン環、フロピロール環、フロフラン環、チエノフラン環、ベンゾイソオキサゾール環、ベンゾイソチアゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、キノリン環、イソキノリン環、キノキサリン環、ペリミジン環、キナゾリン環、キナゾリノン環、等が挙げられる。

【0082】

また、上記化学式 (U 3) 及び (U 4) 中の環 A^1 及び環 B^2 は、同種または異なる 2 種以上の環構造単位が 1 以上 10 以下、直接、もしくは酸素原子、窒素原子、硫黄原子、核炭素数 1 以上 20 以下のヘテロ原子を含んでもよい鎖状基、及び炭素数が 1 以上 20 以下の脂肪族基から選ばれる 1 種以上の 2 価の連結基を介して連結した構造とすることも可能である。なお連結される環構造単位としては、上記芳香族炭化水素環や芳香族複素環と同様、または異なる芳香族炭化水素環や芳香族複素環とすることができる。またこれらの芳香族炭化水素環及び芳香族複素環は置換基を有していてもよい。

【0083】

環 A^1 または環 B^1 の置換基としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、2-プロピル基、 n -ブチル基、イソブチル基、 $tert$ -ブチル基等の炭素数 1 以上 10 以下 40

10

20

30

40

50

の直鎖または分岐のアルキル基；ビニル基、アリル基、1-ブテニル基等の炭素数1以上8以下のアルケニル基；エチニル基、プロパルギル基等の炭素数1以上8以下のアルキニル基；ベンジル基等の炭素数2以上8以下のアラルキル基；フェニルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基等のアリールアミノ基；ピリジルアミノ基、チエニルアミノ基、ジチエニルアミノ基等のヘテロアリールアミノ基；アセチルアミノ基、ベンゾイルアミノ基等のアシルアミノ基；メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基等の炭素数1以上8以下のアルコキシ基；アクリロイルオキシル基、メチルカルボニルアオキシル基、エチルカルボニルアオキシル基、ヒドロキシカルボニルメチルカルボニルオキシル基、ヒドロキシカルボニルエチルカルボニルオキシル基、ヒドロキシフェニルカルボニルオキシル基等の炭素数1以上15以下のアシルオキシル基；フェニルオキシ基、1-ナフチルオキシ基、2-ナフチルオキシ基、等の炭素数10以上20以下のアリールオキシル基；等が挙げられる。これらの置換基はお互いに直接、あるいは、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $>CO$ 、 $>SO_2$ 、 $-(C_\alpha H_{2-\alpha})-$ 、 $-O-(C_\beta H_{2-\beta})-$ 、置換もしくは無置換の炭素数2以上20以下のアルキリデン基、置換基を有していてもよい炭素数2以上20以下のアルキレン基等、2価の連結基を介して結合し、環状構造を形成してもよい。上記xおよびyは、それぞれ1以上20以下の整数を表す。

10

【0084】

これらの置換基は1種のみ、または2種以上が任意の組み合わせで1つ、または2つ以上が環A¹または環B¹に置換していてもよい。

20

【0085】

上記化学式(U3)及び化学式(U4)におけるS^{2 1}、S^{2 2}、R^{2 1}～R^{2 6}、S^{3 1}～S^{3 4}、R^{3 1}～R^{3 6}は、それぞれ独立に、水素原子；水酸基；メチル基、エチル基、n-プロピル基、2-プロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基等の置換基を有していてもよい炭素数が通常1以上、通常50以下、好ましくは10以下の直鎖または分岐のアルキル基；置換基を有していてもよい核炭素数が通常5以上50以下の芳香族炭化水素環基；置換基を有していてもよい核炭素数が5以上40以下の芳香族複素環基；ベンジル基等の置換基を有していてもよい核炭素数が通常6以上、好ましくは7以上、通常50以下、好ましくは8以下のアラルキル基；メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基等の置換基を有していてもよい炭素数が通常1以上、通常50以下、好ましくは8以下のアルコキシ基；フェニルオキシ基、1-ナフチルオキシ基、2-ナフチルオキシ基等の置換基を有していてもよい核炭素数が通常5以上、好ましくは6以上、通常50以下、好ましくは15以下のアリールオキシ基；置換基を有していてもよい核炭素数が通常2以上50以下のアシル基；ビニル基、アリル基、1-ブテニル基等の置換基を有していてもよい炭素数が通常1以上8以下のアルケニル基；エチニル基、プロパギル基等の置換基を有していてもよい炭素数が通常1以上8以下のアルキニル基；アクリロイルオキシル基、メチルカルボニルオキシル基、エチルカルボニルオキシル基、ヒドロキシカルボニルメチルカルボニルオキシル基、ヒドロキシカルボニルエチルカルボニルオキシル基、ヒドロキシフェニルカルボニルオキシル基等の置換基を有していてもよい核炭素数が通常2以上、通常50以下、好ましくは15以下のアシルオキシ基；フェニルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基等の置換基を有していてもよい核炭素数が通常6以上50以下のアリールアミノ基；ピリジルアミノ基、チエニルアミノ基、ジチエニルアミノ基等の置換基を有していてもよい核炭素数が通常5以上50以下のヘテロアリールアミノ基；またはアセチルアミノ基、ベンゾイルアミノ基等の置換基を有していてもよい炭素数が通常2以上50以下のアシルアミノ基を表す。

30

40

【0086】

本発明の解離性基を有する共役ポリマーは、前記式(2)で表される繰り返し単位を含むことが好ましい。

【0087】

(熱解離性可溶性基の割合)

解離性基は、上記解離性ポリマーの繰り返し単位以外の部分に含まれていてもよい。解

50

離性ポリマー鎖の中に含まれる解離性基は、好ましくは平均 5 以上、より好ましくは平均 10 以上、より好ましくは平均 50 以上である。

【 0 0 8 8 】

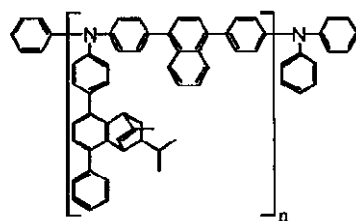
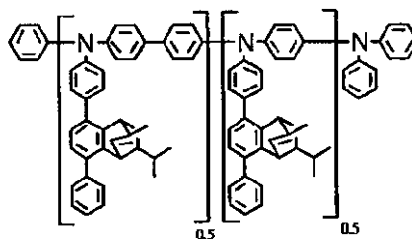
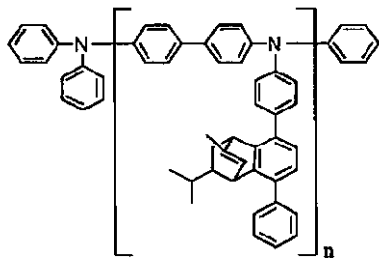
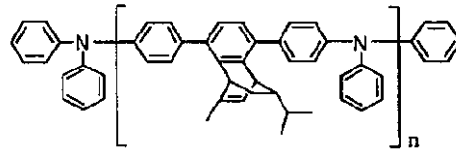
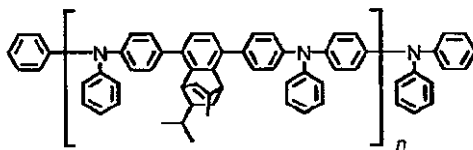
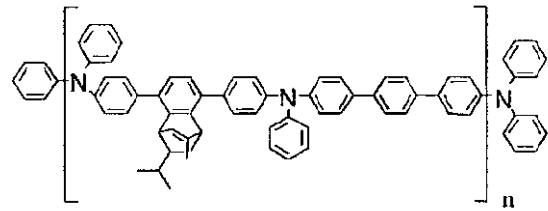
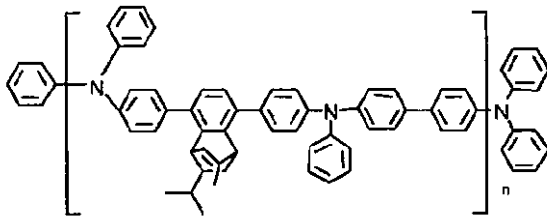
上記範囲内であると、解離性ポリマーを用いて形成した有機層の有機溶媒に対する溶解性の低下が十分である点で好ましい。

【 0 0 8 9 】

以下、本発明における解離性ポリマーの好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【 0 0 9 0 】

【化 9】



【 0 0 9 1 】

(架橋性基)

また、本発明における芳香族アミン系ポリマーは、共役ポリマーである場合、不溶化基として、架橋性基を有していることが、熱及び／又は活性エネルギー線の照射により起こる反応（架橋反応）の前後で、溶媒に対する溶解性に大きな差を生じさせることができる点で好ましい。

【 0 0 9 2 】

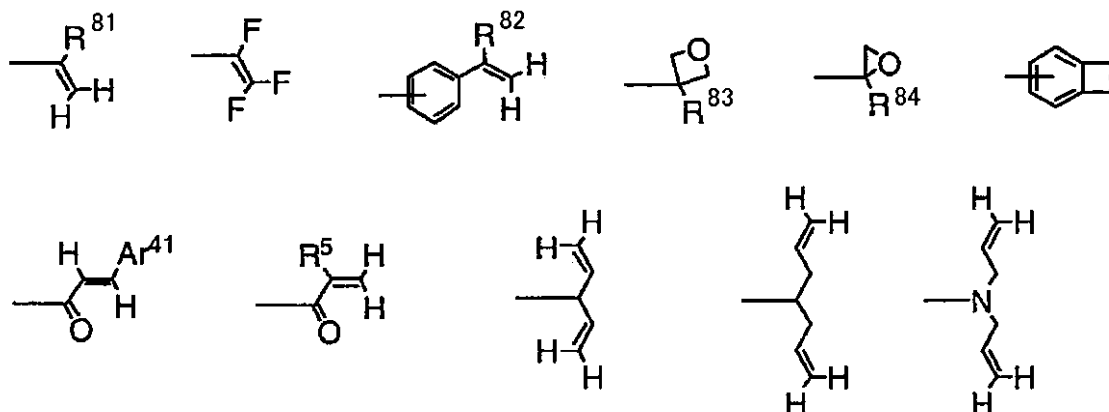
ここで、架橋性基とは、熱及び／又は活性エネルギー線の照射により近傍に位置するほかの分子の同一又は異なる基と反応して、新規な化学結合を生成する基のことをいう。

架橋性基としては、架橋がしやすいという点で、例えば、架橋性基群 T に示す基が挙げられる。

【0093】

<架橋性基群 T>

【化10】



10

【0094】

(式中、 $R^{81} \sim R^{85}$ は、各々独立に、水素原子又はアルキル基を表す。 Ar^{41} は置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基又は置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表す。尚、ベンゾシクロブテン環は、置換基を有していてもよく、また置換基同士が互いに結合して環を形成してもよい。)

20

【0095】

エポキシ基、オキセタン基などの環状エーテル基、ビニルエーテル基などのカチオン重合によって不溶化反応する基が、反応性が高く不溶化が容易な点で好ましい。中でも、カチオン重合の速度を制御しやすい点でオキセタン基が特に好ましく、カチオン重合の際に素子の劣化をまねくおそれのあるヒドロキシル基が生成しにくい点でビニルエーテル基が好ましい。

【0096】

シンナモイル基などアリールビニルカルボニル基、ベンゾシクロブテン環由来の基などの環化付加反応する基が、電気化学的安定性をさらに向上させる点で好ましい。

また、架橋性基の中でも、不溶化後の構造が特に安定な点で、ベンゾシクロブテン環由来の基が特に好ましい。

30

具体的には、下記式(5)で表される基であることが好ましい。

【0097】

【化11】



(5)

40

【0098】

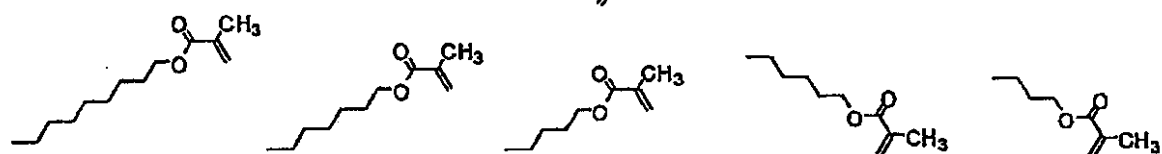
(式(5)中のベンゾシクロブテン環は、置換基を有していてもよい。また、置換基同士が、互いに結合して環を形成してもよい。)

【0099】

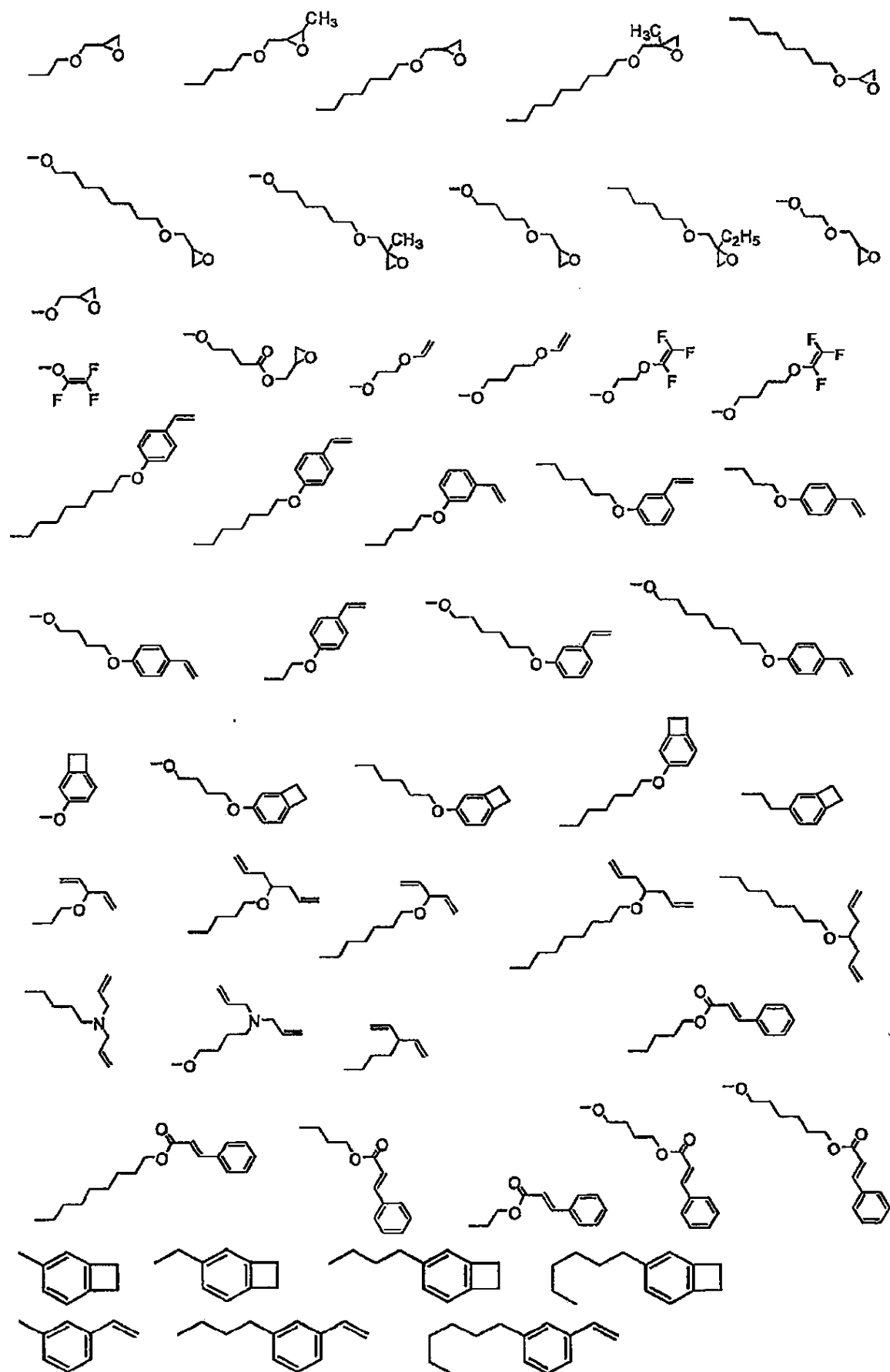
架橋性基は分子内の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基に直接結合してもよいが、2価の基を介して結合してもよい。この2価の基としては、 $-O-$ 基、 $-C(=O)-$ 基又は(置換基を有していてもよい) $-CH_2-$ 基から選ばれる基を任意の順番で1~30個連結してなる2価の基を介して、芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基に結合することが好ましい。これら2価の基を介する架橋性基、すなわち、架橋性基を含む基の具体例は以下の<架橋性基を含む基群 T'>に示す通りであるが、本発明はこれらに限定されるもので

50

【化 1 2】



【化 1 3】



10

20

30

40

【 0 1 0 2】

50

(架橋性基の割合)

本発明における架橋性ポリマーが有する架橋性基の数は、分子量 1000 あたりの数で表すことができる。

上記架橋性ポリマーが有する架橋性基の数を、分子量 1000 あたりの数で表した場合、分子量 1000 あたり、通常 3.0 個以下、好ましくは 2.0 個以下、さらに好ましくは 1.0 以下、また通常 0.01 以上、好ましくは 0.05 以上である。

【0103】

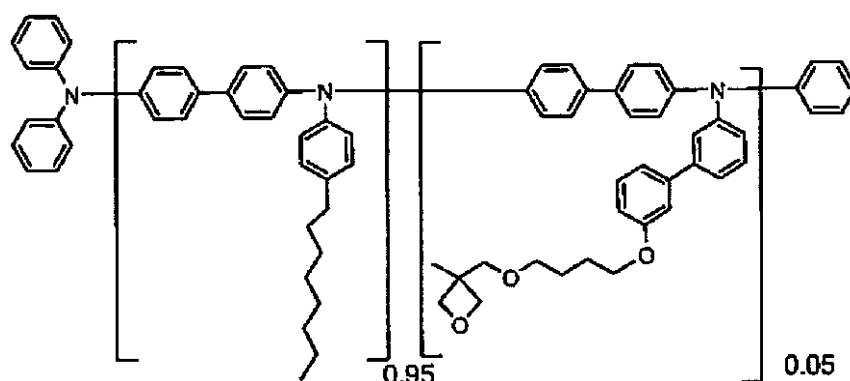
上記範囲内であると、より平坦な膜が得られ、また膜を形成した後の未反応架橋性基の数が駆動寿命に影響しにくくなるため、好ましい。

ここで、架橋性ポリマーの分子量 1000 あたりの架橋性基の数は、架橋性ポリマーからその末端基を除いて、合成時の仕込みモノマーのモル比と、構造式から算出する。

例えば、下記化合物の場合で説明する。

【0104】

【化 14】



【0105】

上記化合物において、末端基を除いた繰り返し単位の分子量は平均 362.33 であり、また架橋性基は、1 繰り返し単位当たり平均 0.05 個である。これを単純比例により計算すると、分子量 1000 あたりの架橋性基の数は、0.138 個と算出される。

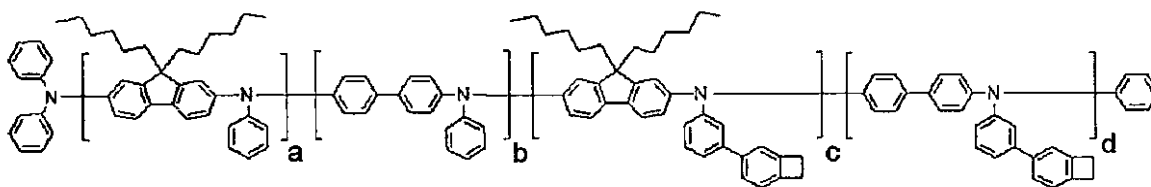
以下に、本発明における架橋性ポリマーの好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0106】

[具体例]

【0107】

【化 15】

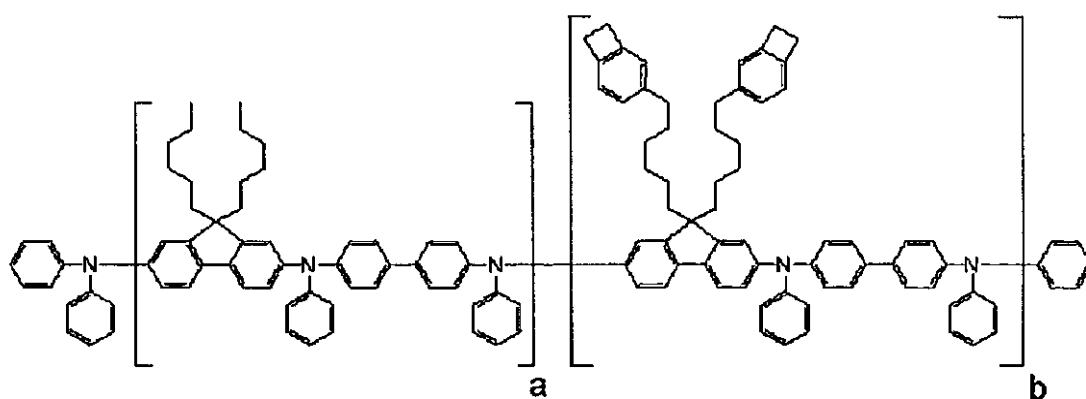


【0108】

(上記式において、例えば、 $a = 0.475$ 、 $b = 0.475$ 、 $c = 0.025$ 、 $d = 0.025$ のものが挙げられる。)

【0109】

【化 1 6】



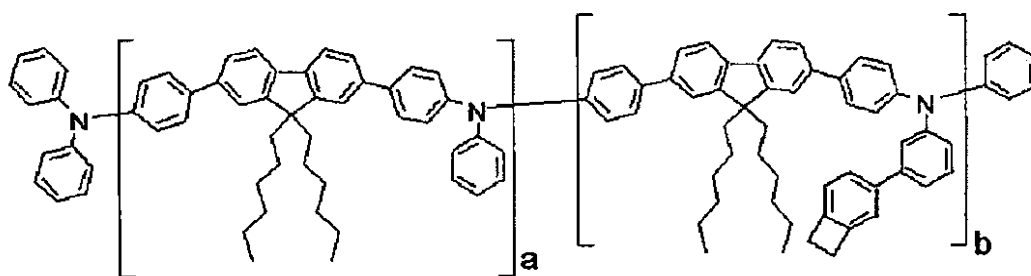
10

【 0 1 1 0】

(上記式において、例えば、 $a = 0.9$ 、 $b = 0.1$ のものが挙げられる。)

【 0 1 1 1】

【化 1 7】



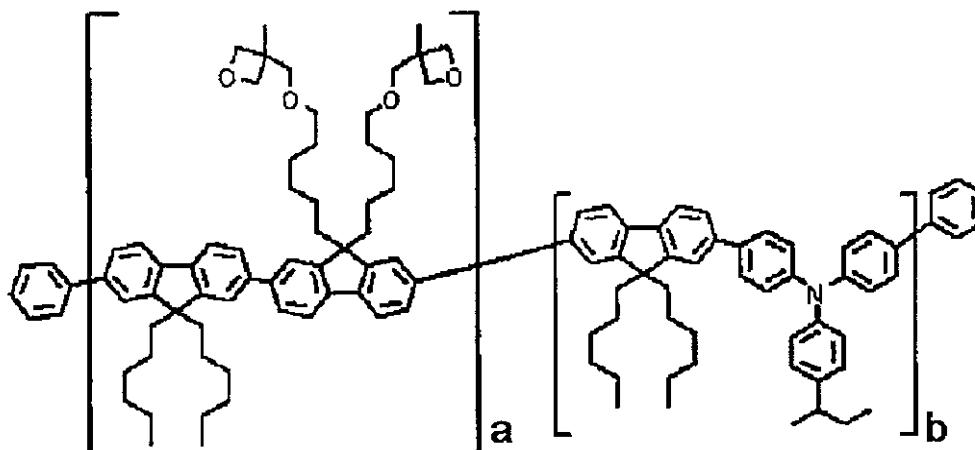
20

【 0 1 1 2】

(上記式において、例えば、 $a = 0.94$ 、 $b = 0.06$ のものが挙げられる。)

【 0 1 1 3】

【化 1 8】



40

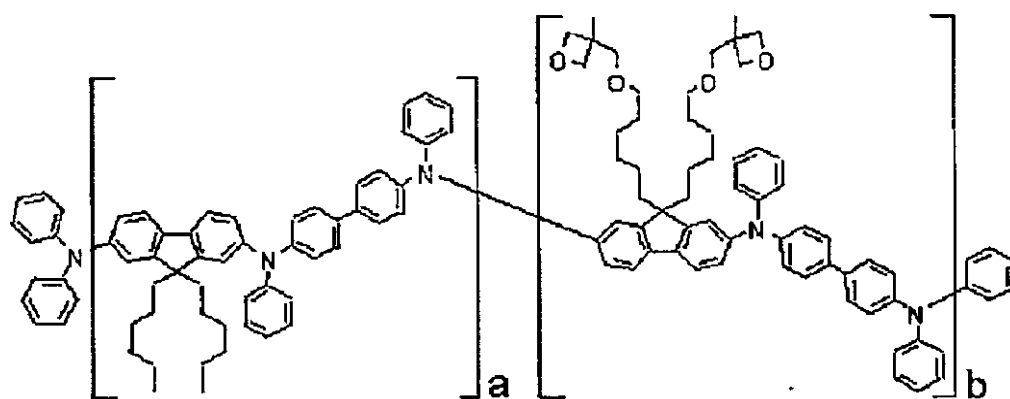
【 0 1 1 4】

(上記式において、例えば、 $a = 0.1$ 、 $b = 0.9$ のものが挙げられる。)

【 0 1 1 5】

50

【化 1 9】



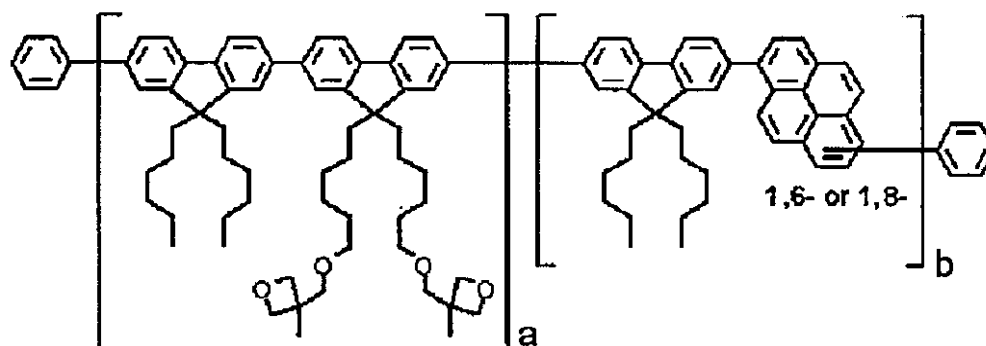
10

【 0 1 1 6】

(上記式において、例えば、 $a = 0.9$ 、 $b = 0.1$ のものが挙げられる。)

【 0 1 1 7】

【化 2 0】



20

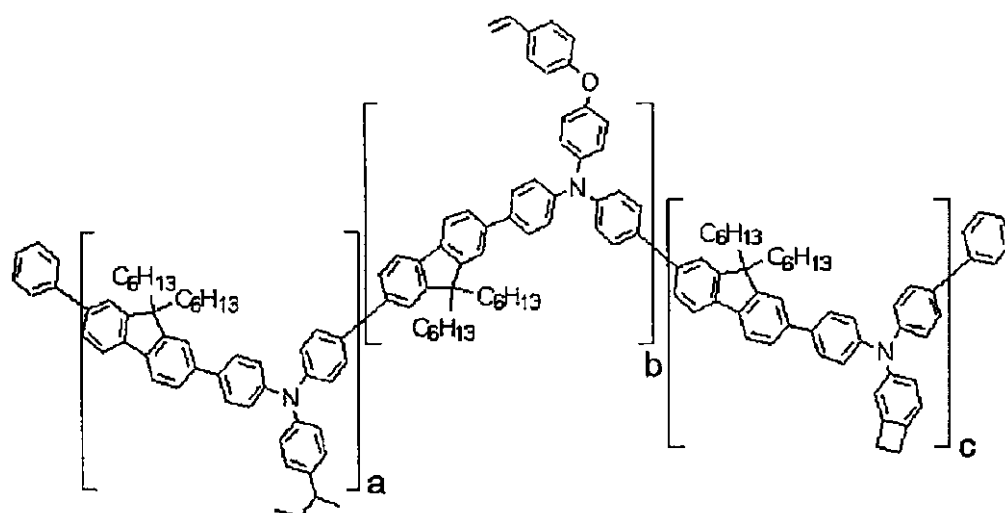
30

【 0 1 1 8】

(上記式において、例えば、 $a = 0.1$ 、 $b = 0.9$ のものが挙げられる。)

【 0 1 1 9】

【化 2 1】



10

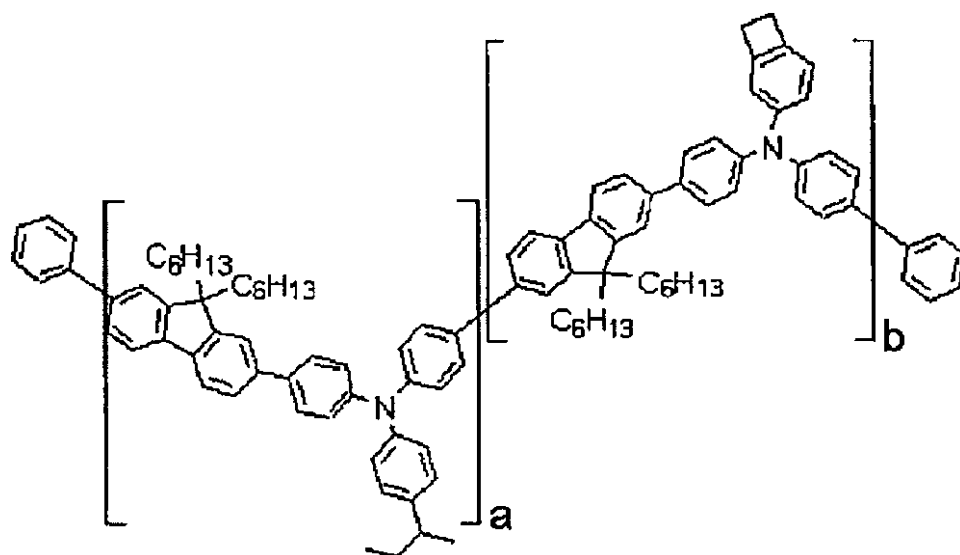
【0 1 2 0】

(上記式において、例えば、 $a = 0.8$ 、 $b = 0.1$ 、 $c = 0.1$ のものが挙げられる。)

20

【0 1 2 1】

【化 2 2】



30

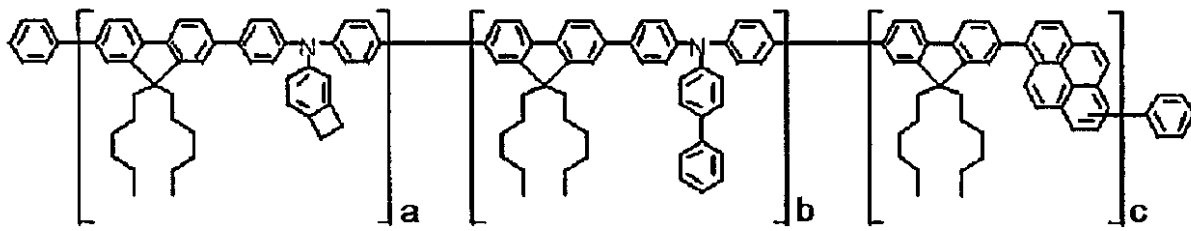
【0 1 2 2】

40

(上記式において、例えば、 $a = 0.8$ 、 $b = 0.2$ のものが挙げられる。)

【0 1 2 3】

【化 2 3】



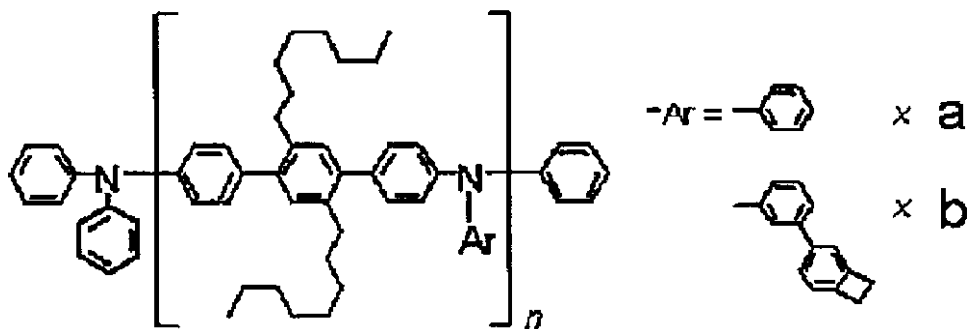
10

【0 1 2 4】

(上記式において、例えば、 $a = 0.2$ 、 $b = 0.5$ 、 $c = 0.3$ のものが挙げられる。)

【0 1 2 5】

【化 2 4】



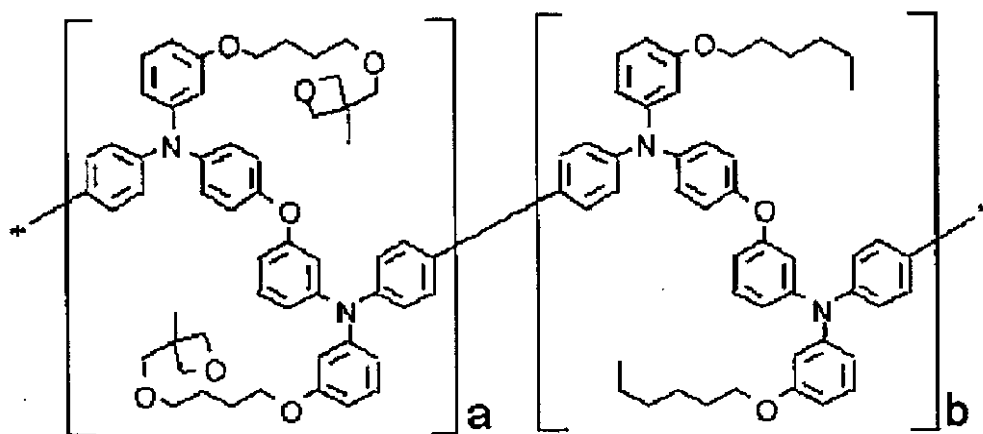
20

【0 1 2 6】

(上記式において、例えば、 $a = 0.9442$ 、 $b = 0.0558$ のものが挙げられる。)

【0 1 2 7】

【化 2 5】



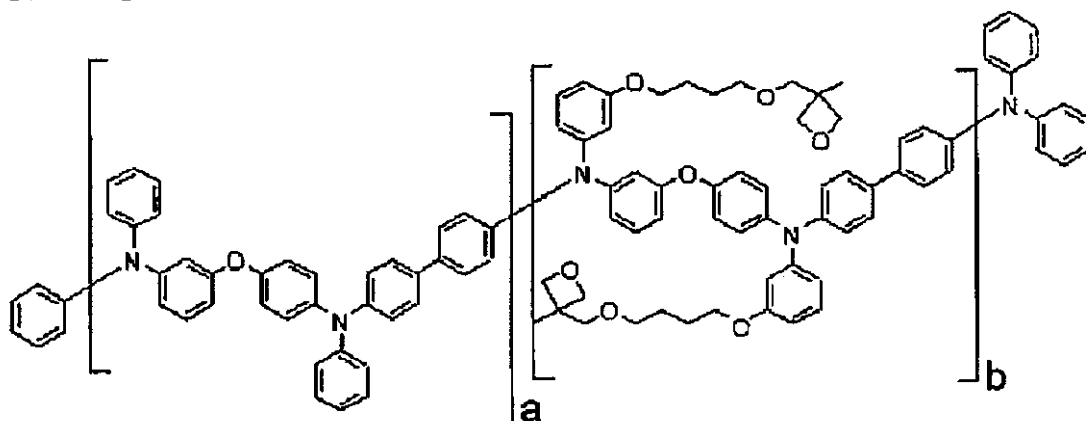
40

【0 1 2 8】

(上記式において、例えば、 $a = 0.1$ 、 $b = 0.9$ のものが挙げられる。)

【0 1 2 9】

【化 2 6】



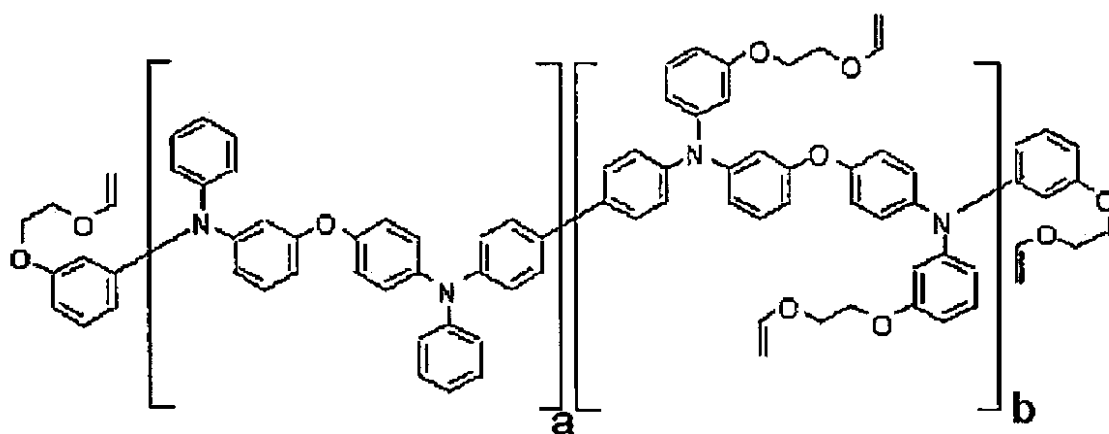
10

【 0 1 3 0】

(上記式において、例えば、 $a = 0.9$ 、 $b = 0.1$ のものが挙げられる。)

【 0 1 3 1】

【化 2 7】



20

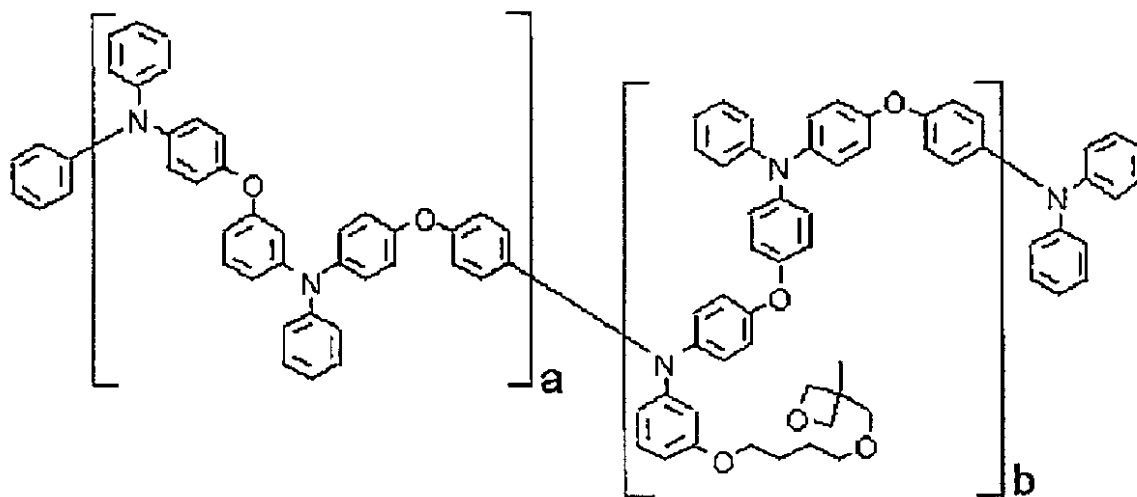
30

【 0 1 3 2】

(上記式において、例えば、 $a = 0.94$ 、 $b = 0.06$ のものが挙げられる。)

【 0 1 3 3】

【化 2 8】



40

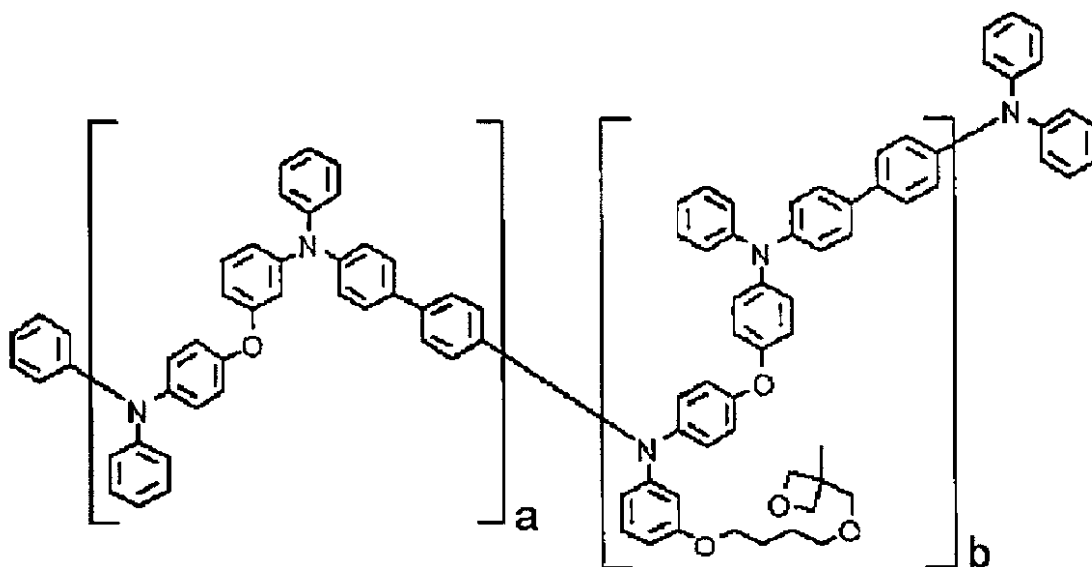
【 0 1 3 4】

50

(上記式において、例えば、 $a = 0.9$ 、 $b = 0.1$ のものが挙げられる。)

【0135】

【化29】



10

【0136】

(上記式において、例えば、 $a = 0.9$ 、 $b = 0.1$ のものが挙げられる。)

【0137】

(特に好ましい架橋性基を有する共役ポリマー)

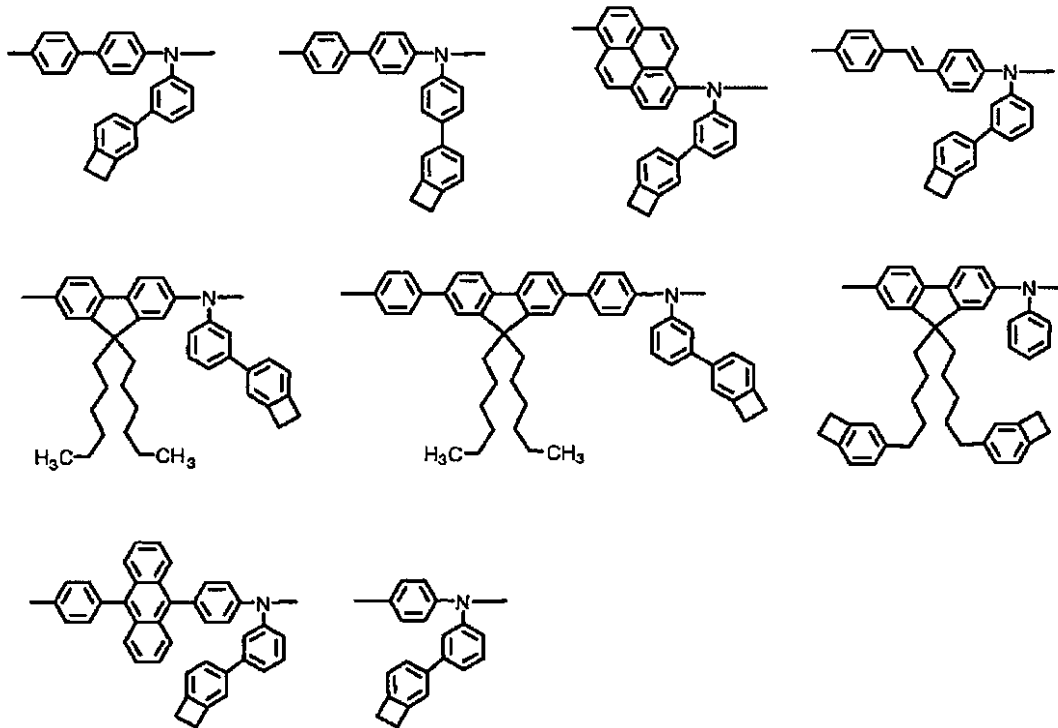
本発明における架橋性ポリマーは、下記の繰り返し単位群Aからなる群より選ばれる少なくとも一つの繰り返し単位、及び下記の繰り返し単位群Bからなる群より選ばれる少なくとも一つの繰り返し単位を有する共役ポリマーであることが、電荷輸送能が高く、酸化還元安定性に優れる点で特に好ましい。

【0138】

<繰り返し単位群A>

20

【化 3 0】



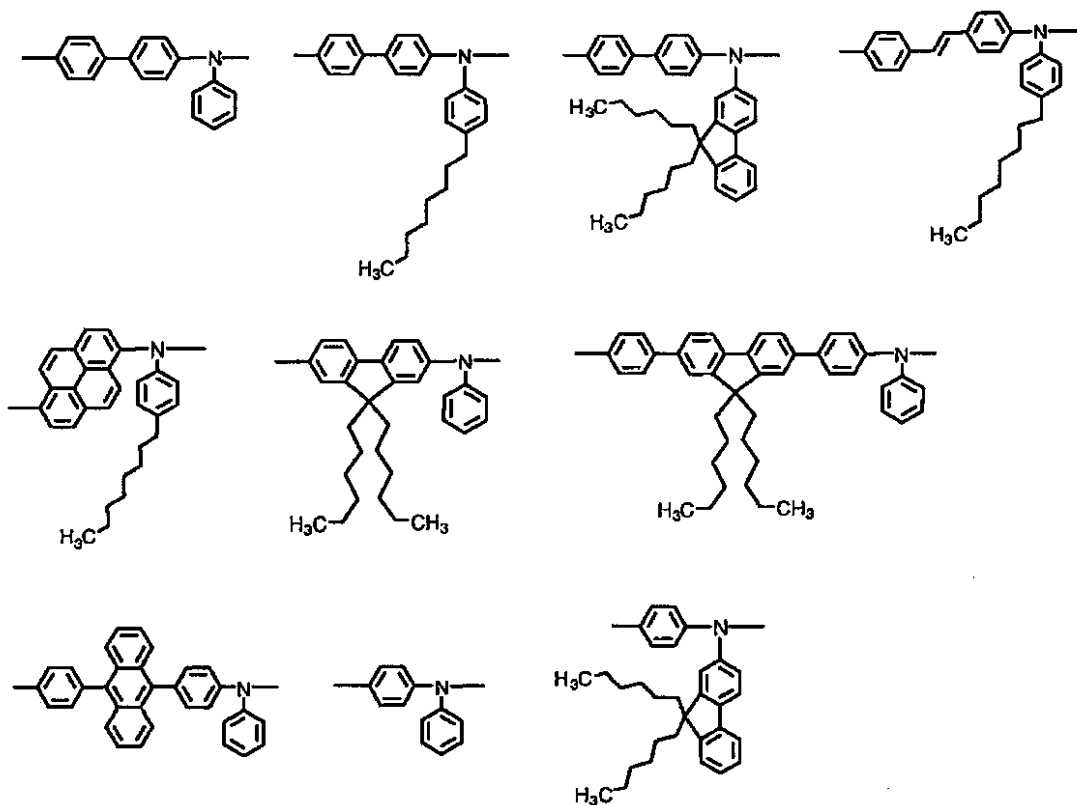
10

20

【 0 1 3 9】

<繰り返し単位群 B>

【化 3 1】



30

40

【 0 1 4 0】

(ガラス転移温度、その他の物性)

本発明における架橋性ポリマーのガラス転移温度は、通常 50℃以上、有機電界発光素

50

子の耐熱性を含めた駆動安定性の点で好ましくは80℃以上、より好ましくは100℃以上、また、通常300℃以下である。

また、上記共役ポリマーのイオン化ポテンシャルは、電荷輸送能が優れる点で、通常4.5 eV以上、好ましくは4.8 eV以上、また、通常6.0 eV以下、好ましくは5.7 eV以下である。

【0141】

(架橋性基を有する共役ポリマーである利点)

溶液状態の電荷輸送膜用組成物の場合、溶液であるために架橋性基の分子運動が固体状態よりも大きくなる。このとき、架橋性ポリマーの凝集状態において、架橋性基同士が常に近くに存在し続けた場合、適度な分子運動のために、後述の不溶化のための加熱温度以下であっても凝集状態で架橋してしまう確率が高くなると推測される。凝集状態でない均一な溶液の場合は、架橋性ポリマー分子そのものの分子運動が大きいために架橋性基同士が常に近くに存在し続けることはなため、後述の不溶化のための加熱温度以下の溶液状態では架橋する可能性はほとんどない。

【0142】

(非共役ポリマーについて)

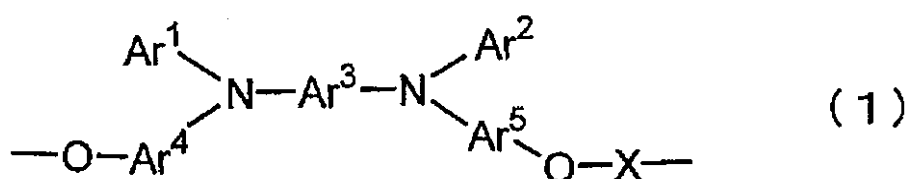
本発明における芳香族アミン系ポリマーは、非共役ポリマーであることが好ましい。この理由としては、電子受容性化合物により、アミン部位がカチオンラジカルになった場合、主鎖が共役していないことから、電圧の印加がない状態ではカチオンラジカルが移動し難い。つまり、カチオンラジカルが、ポリマー鎖中に均一に分布している。この為、カチオンラジカルがポリマー鎖中を伝播して、ポリマーが局在化してしまうことによる凝集が置きにくいため好ましい。

【0143】

非共役ポリマーの中でも、前記式(2)で表される繰り返し単位を含むことが好ましく、更に、正孔注入・輸送性が高いという理由から、下記式(1)で表される繰り返し単位を含むポリマーであることが好ましい。

【0144】

【化32】



【0145】

(式(1)中、Ar¹及びAr²は、各々独立に、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基、又は置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表す。Ar³～Ar⁵は、各々独立に、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基、又は置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表す。Xは、2価の連結基を表す。また、Ar¹～Ar⁵のうち、同一のN原子に結合する二つの基は互いに結合して環を形成してもよい。)

【0146】

Ar¹～Ar⁵は、各々独立に、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基、又は置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表す。これらは、同一のN原子に結合する二つの基は互いに結合して環を形成してもよい。

【0147】

Ar¹及びAr²としては、芳香族アミン系ポリマーの溶解性、耐熱性、正孔注入・輸送性の点から、各々独立に、ベンゼン環、ナフタレン環、フェナントレン環、チオフェン環、ピリジン環由来の基が好ましく、フェニル基(ベンゼン環由来の基)、ナフチル基(ナフタレン環由来の基)が好ましい。

また、 $Ar^3 \sim Ar^5$ としては、耐熱性、酸化還元電位を含めた正孔注入・輸送性の点から、各々独立に、ベンゼン環、ナフタレン環、トリフェニレン環、フェナントレン環由来の基が好ましく、フェニレン基（ベンゼン環由来の基）、ビフェニレン基（ベンゼン環由来の基）、ナフチレン基（ナフタレン環由来の基）が好ましい。

【0148】

$Ar^1 \sim Ar^5$ における芳香族炭化水素基及び芳香族複素環基が有していてもよい置換基としては、前記の（置換基群Z）と同義である。また、これらのうち好ましい基についても同様である。

置換基の分子量としては、通常400以下、中でも250以下程度が好ましい。

【0149】

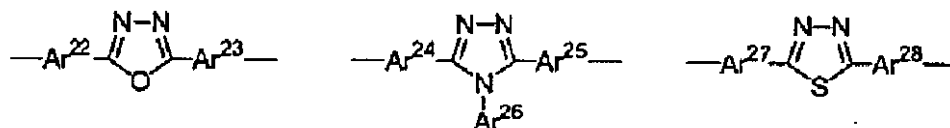
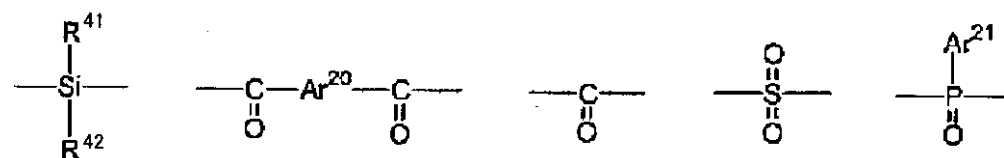
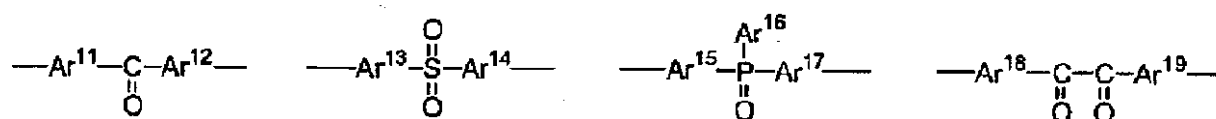
（連結基X）

さらに、前記式（2）で表される繰り返し単位において、連結基Xが、連結基群X'から選ばれた2個の連結基であることが好ましい。

【0150】

<連結基群X'>

【化33】



（式中、 $Ar^{11} \sim Ar^{28}$ は、各々独立して、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基または置換基を有していてもよい芳香族複素環基を表す。 R^{41} および R^{42} は、各々独立して、水素原子または任意の置換基を表す。）

【0151】

$Ar^{11} \sim Ar^{28}$ としては、前記の $Ar^1 \sim Ar^5$ と同様の基が挙げられる。

【0152】

R^{41} 及び R^{42} は、水素原子または置換基である。該置換基を例示するならば、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、シリル基、シロキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基などが挙げられ、これらの具体例及び好ましい例としては、前記の（置換基群Z）に例示したものが挙げられる。

【0153】

$Ar^{11} \sim Ar^{28}$ における芳香族炭化水素基及び芳香族複素環基が有していてもよい置換基としては、前記の（置換基群Z）の項に例示したものが挙げられる。

【0154】

また、本発明で用いる芳香族アミン系ポリマーは、正孔注入・輸送性が非常に高いという理由から、上記式（1）は下記式（1-1）であることが好ましく、下記式（1-2）であることがさらに好ましい。

【0155】

10

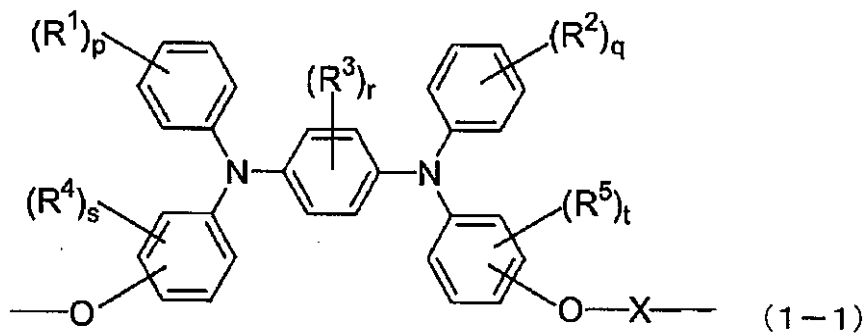
20

30

40

50

【化 3 4】



10

【0 1 5 6】

(式中、 $R^1 \sim R^5$ は、各々独立して置換基を表す。 p および q は、各々独立して0～5の整数を表す。 r 、 s および t は各々独立して0～4の整数を表す。 X は式(1)におけるものと同義である。)

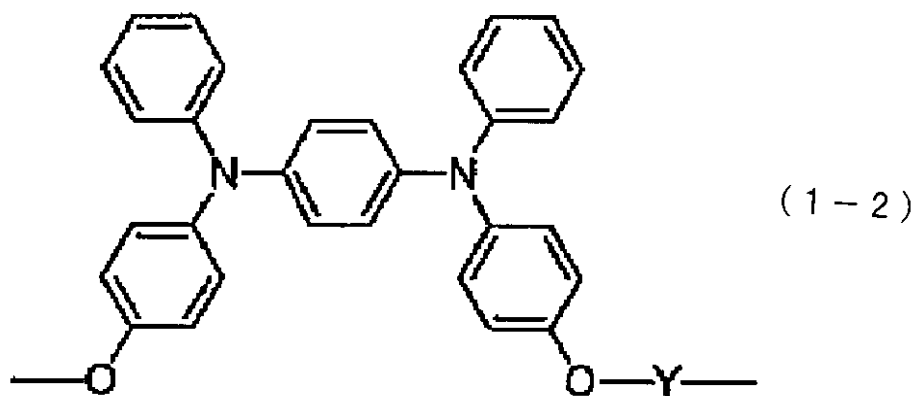
【0 1 5 7】

上記式(1-1)において、 $R^1 \sim R^5$ の具体例は、前述の $Ar^1 \sim Ar^5$ が有していてもよい置換基の例、すなわち上記置換基群Zに例示されたものが該当する。

【0 1 5 8】

20

【化 3 5】



30

【0 1 5 9】

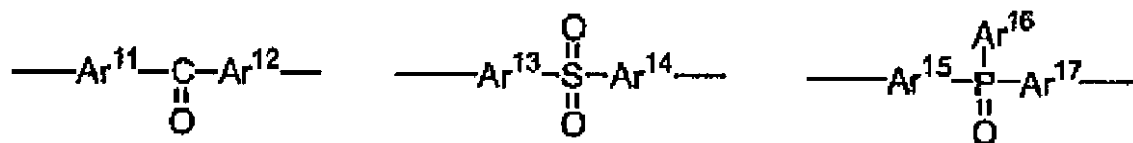
(式中、 Y は、下記の連結基群 X'' の中から選ばれる連結基を表す。)

【0 1 6 0】

<連結基群 X'' >

【化 3 6】

40



【0 1 6 1】

(式中、 $Ar^{11} \sim Ar^{17}$ は、上記の $Ar^{11} \sim Ar^{17}$ と同義である。また、好ましい例も同様である。)

【0 1 6 2】

(芳香族アミン系ポリマーの繰り返し単位的具体例)

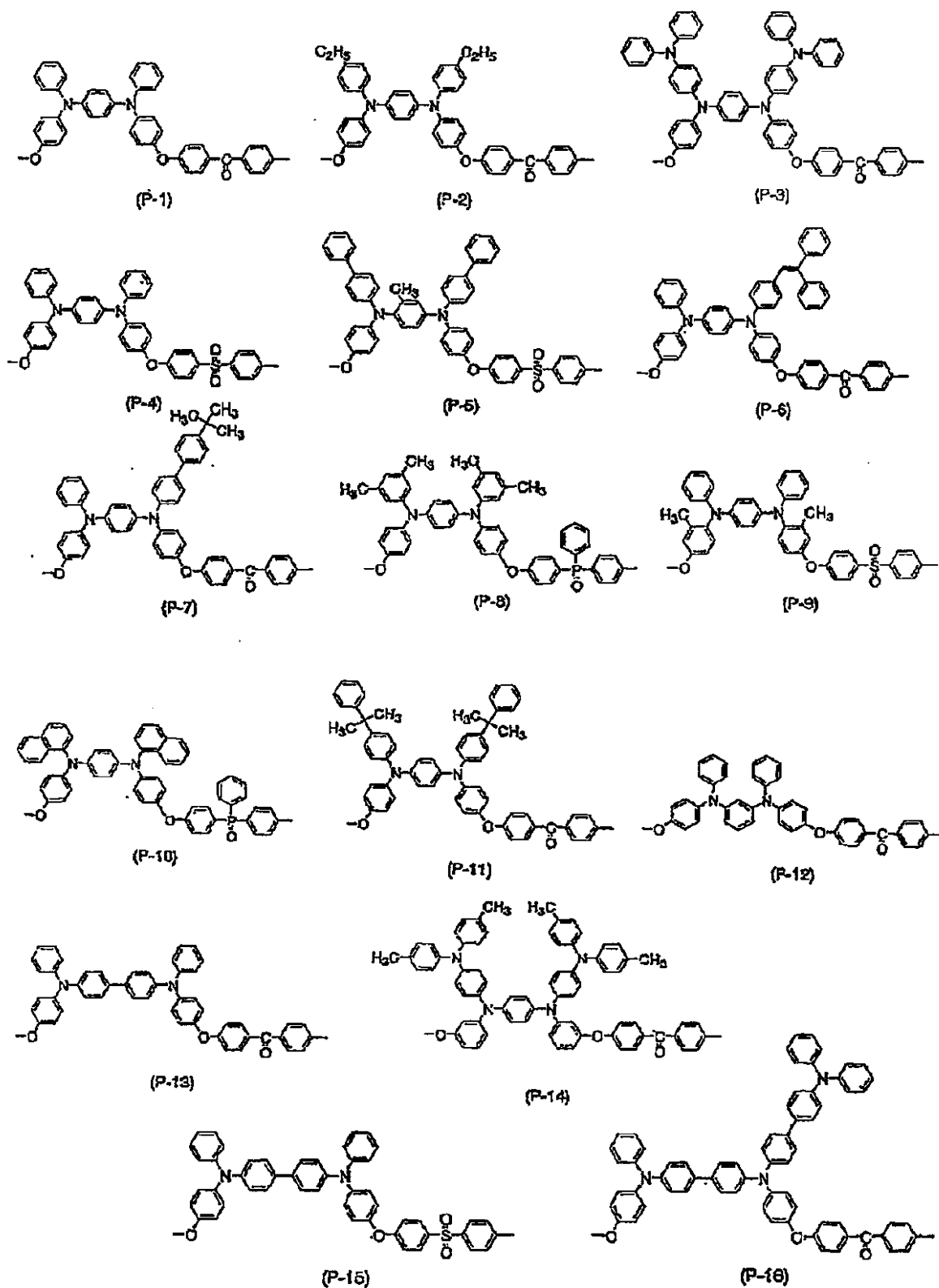
以下、本発明における芳香族アミン系ポリマーを構成する繰り返し単位の好ましい例に

50

ついて例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0163】

【化37】



10

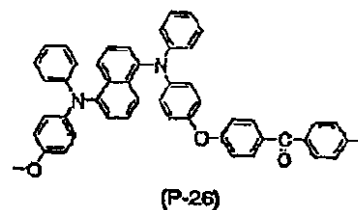
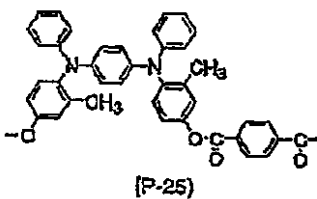
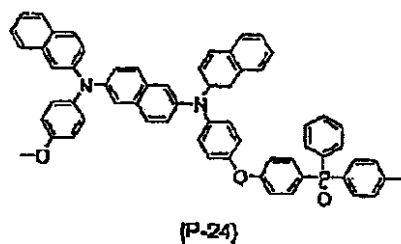
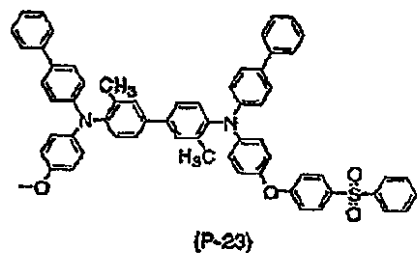
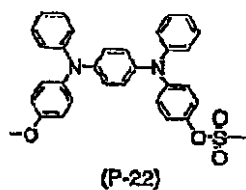
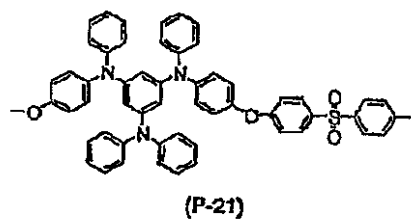
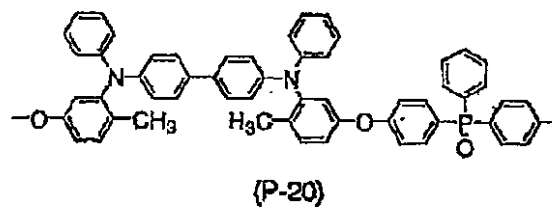
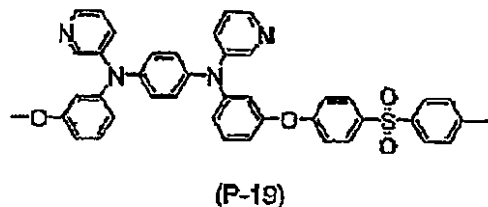
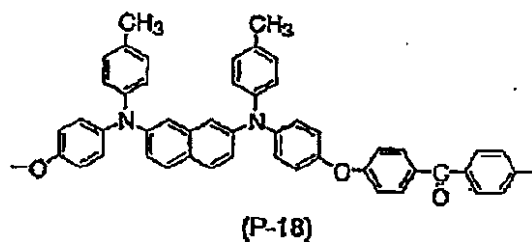
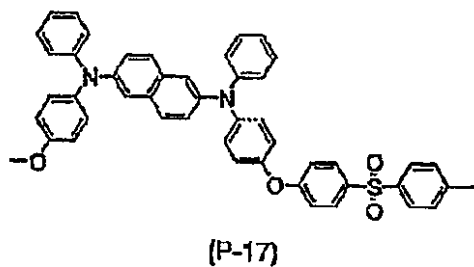
20

30

40

【0164】

【化 3 8】



【0165】

上記具体例のうち、耐熱性、電荷輸送能の点で、好ましくはP-1～P-11、P-13～P-18、P-20、P-21、P-23、P-25、P-26の繰り返し単位であり、更に好ましくは、P-1、P-3、P-4、P-6、P-9、P-10の繰り返し単位であり、より好ましくはP-1～P-11、P-13～P-18、P-20、P-21、P-23、P-25、P-26の繰り返し単位であり、更に好ましくは、P-1、P-3、P-4、P-6、P-9、P-10の繰り返し単位であり、最も好ましくはP-1、P-4の繰り返し単位である。

【0166】

本発明における芳香族アミン系ポリマーは、異なる2種以上の繰り返し単位を含むポリマーであってもよい。

また、式(1)で表される繰り返し単位中のAr¹～Ar⁵又は連結基Xが異なることで、異なる繰り返し単位になっていてもよい。

【0167】

本発明の有機電界発光素子用組成物における前記の芳香族アミン系ポリマーの含有量は

、通常1重量%以上、好ましくは2重量%以上、また、通常6重量%以下、好ましくは5重量%以下である。芳香族アミン系ポリマーの含有量が少なすぎると電荷輸送能が不足する場合がある。また、多すぎると芳香族アミン系ポリマーの有機溶媒に対する溶解性が低下する場合がある。異なる二種以上の芳香族アミン系ポリマーを併用する場合は、これらの合計の含有量が上記範囲に含まれるようにする。

【0168】

<電子受容性化合物>

電子受容性化合物とは、酸化力を有し、上述の正孔輸送性化合物から一電子受容する能力を有する化合物が好ましく、具体的には、電子親和力が4 eV以上である化合物が好ましく、5 eV以上の化合物である化合物がさらに好ましい。

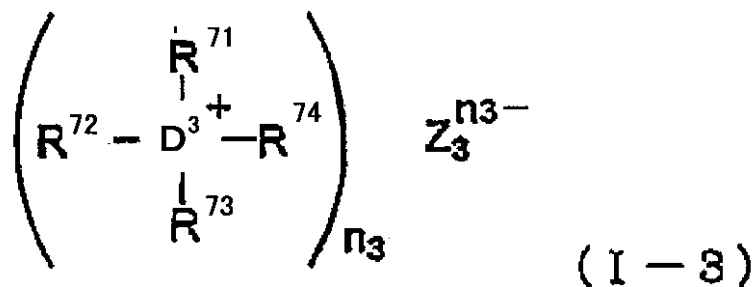
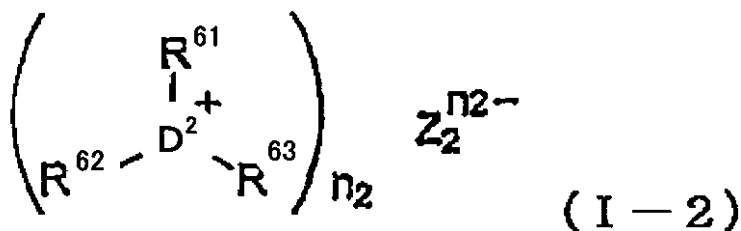
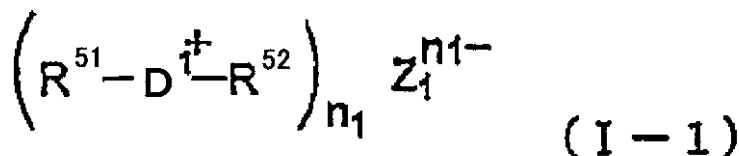
このような電子受容性化合物としては、例えば、トリアリールホウ素化合物、ハロゲン化金属、ルイス酸、有機酸、オニウム塩、アリールアミンとハロゲン化金属との塩、アリールアミンとルイス酸との塩よりなる群から選ばれる1種または2種以上の化合物等が挙げられる。

【0169】

本発明の有機電界発光素子用組成物に含有される電子受容性化合物は、周期表の第15～17族に属する元素に、少なくとも一つの有機基が炭素原子で結合した構造を有するイオン化合物であることが好ましく、さらに下記式(I-1)～(I-3)のいずれかで表される化合物であることが好ましい。

【0170】

【化39】



【0171】

式(I-1)～(I-3)中、 R^{51} 、 R^{61} 及び R^{71} は、各々独立に、 $D^1 \sim D^3$ と炭素原子で結合する有機基を表し、 R^{52} 、 R^{62} 、 R^{63} 及び $R^{72} \sim R^{74}$ は、各々独立に、置換基を表す。 $R^{51} \sim R^{74}$ のうち隣接する2以上の基が、互いに結合して環を形成していてもよい。

$R^{5\ 1}$ 、 $R^{6\ 1}$ 及び $R^{7\ 1}$ としては、 $D^1 \sim D^3$ との結合部分に炭素原子を有する有機基であれば、本発明の効果を損なわない限り、その種類は特に制限されない。本発明における有機基とは、少なくとも一つの炭素原子を含む基である。

【0172】

$R^{5\ 1}$ 、 $R^{6\ 1}$ 及び $R^{7\ 1}$ の分子量は、各々、その置換基を含めた値で、通常 1000 以下、好ましくは 500 以下の範囲である。 $R^{5\ 1}$ 、 $R^{6\ 1}$ 及び $R^{7\ 1}$ の好ましい例としては、正電荷を非局在化させる点から、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基が挙げられる。中でも、正電荷を非局在化させるとともに熱的に安定であることから、芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基が好ましい。

【0173】

芳香族炭化水素基としては、5 又は 6 員環の単環又は 2～5 縮合環由来の 1 価の基であり、正電荷を当該基上により非局在化させられる基が挙げられる。その具体例としては、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ペリレン環、テトラセン環、ピレン環、ベンズピレン環、クリセン環、トリフェニレン環、アセナフテン環、フルオレン環等の由来の一価の基が挙げられる。

【0174】

芳香族複素環基としては、5 又は 6 員環の単環又は 2～4 縮合環由来の 1 価の基であり、正電荷を当該基上により非局在化させられる基が挙げられる。その具体例としては、フラン環、ベンゾフラン環、チオフェン環、ベンゾチオフェン環、ピロール環、ピラゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、オキサジアゾール環、インドール環、カルバゾール環、ピロロイミダゾール環、ピロロピラゾール環、ピロロピロール環、チエノピロール環、チエノチオフェン環、フロピロール環、フロフラン環、チエノフラン環、ベンゾイソオキサゾール環、ベンゾイソチアゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、トリアジン環、キノリン環、イソキノリン環、シノリン環、キノキサリン環、フェナントリジン環、ベンゾイミダゾール環、ペリミジン環、キナゾリン環、キナゾリノン環、アズレン環等の由来の一価の基が挙げられる。

【0175】

アルキル基としては、直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキル基であって、その炭素数が通常 1 以上、また、通常 12 以下、好ましくは 6 以下のものが挙げられる。具体例としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、2-プロピル基、 n -ブチル基、イソブチル基、 $tert$ -ブチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

アルケニル基としては、炭素数が通常 2 以上、通常 12 以下、好ましくは 6 以下のものが挙げられる。具体例としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基等が挙げられる。

【0176】

アルキニル基としては、炭素数が通常 2 以上、通常 12 以下、好ましくは 6 以下のものが挙げられる。具体例としては、エチニル基、プロパルギル基等が挙げられる。

【0177】

$R^{5\ 2}$ 、 $R^{6\ 2}$ 、 $R^{7\ 2}$ 及び $R^{7\ 2} \sim R^{7\ 4}$ の種類は、本発明の効果を損なわない限り特に制限されない。 $R^{5\ 2}$ 、 $R^{6\ 2}$ 、 $R^{6\ 3}$ 及び $R^{7\ 2} \sim R^{7\ 4}$ の分子量は、各々、その置換基を含めた値で、通常 1000 以下、好ましくは 500 以下の範囲である。 $R^{5\ 2}$ 、 $R^{6\ 2}$ 、 $R^{6\ 3}$ 及び $R^{7\ 2} \sim R^{7\ 4}$ の例としては、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アミノ基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、アルキルカルボニルオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、スルホニルオキシ基、シアノ基、水酸基、チオール基、シリル基等が挙げられる。中でも、 $R^{5\ 1}$ 、 $R^{6\ 1}$ 及び $R^{7\ 1}$ と同様、電子受容性が大きい点から、 $D^1 \sim D^3$ との結合部分に炭素原子を有する有機基が好ましく、例としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基が好ましい。特に、電子受容性が大きいとともに熱的に安定であることから、芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基が好ましい。

10

20

30

40

50

【0178】

アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基としては、 R^{51} 、 R^{61} 及び R^{31} について先に説明したものと同様のものが挙げられる。

アミノ基としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アシルアミノ基等が挙げられる。

アルキルアミノ基としては、炭素数が通常1以上、また、通常12以下、好ましくは6以下のアルキル基を1つ以上有するアルキルアミノ基が挙げられる。具体例としては、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジベンジルアミノ基等が挙げられる。

【0179】

アリールアミノ基としては、炭素数が通常3以上、好ましくは4以上、また、通常25以下、好ましくは15以下の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を1つ以上有するアリールアミノ基が挙げられる。具体例としては、フェニルアミノ基、ジフェニルアミノ基、トリルアミノ基、ピリジルアミノ基、チエニルアミノ基等が挙げられる。

アシルアミノ基としては、炭素数が通常2以上、また、通常25以下、好ましくは15以下のアシル基を1つ以上有するアシルアミノ基が挙げられる。具体例としては、アセチルアミノ基、ベンゾイルアミノ基等が挙げられる。

【0180】

アルコキシ基としては、炭素数が通常1以上、また、通常12以下、好ましくは6以下のアルコキシ基が挙げられる。具体例としては、メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基等が挙げられる。

アリールオキシ基としては、炭素数が通常3以上、好ましくは4以上、また、通常25以下、好ましくは15以下の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を有するアリールオキシ基が挙げられる。具体例としては、フェニルオキシ基、ナフチルオキシ基、ピリジルオキシ基、チエニルオキシ基等が挙げられる。

【0181】

アシル基としては、炭素数が通常1以上、また、通常25以下、好ましくは15以下のアシル基が挙げられる。具体例としては、ホルミル基、アセチル基、ベンゾイル基等が挙げられる。

アルコキシカルボニル基としては、炭素数が通常2以上、また、通常10以下、好ましくは7以下のアルコキシカルボニル基が挙げられる。具体例としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等が挙げられる。

【0182】

アリールオキシカルボニル基としては、炭素数が通常3以上、好ましくは4以上、また、通常25以下、好ましくは15以下の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を有するものが挙げられる。具体例としては、フェノキシカルボニル基、ピリジルオキシカルボニル基等が挙げられる。

アルキルカルボニルオキシ基としては、炭素数が通常2以上、また、通常10以下、好ましくは7以下のアルキルカルボニルオキシ基が挙げられる。具体例としては、アセトキシ基、トリフルオロアセトキシ基等が挙げられる。

【0183】

アルキルチオ基としては、炭素数が通常1以上、また、通常12以下、好ましくは6以下のアルキルチオ基が挙げられる。具体例としては、メチルチオ基、エチルチオ基等が挙げられる。

アリールチオ基としては、炭素数が通常3以上、好ましくは4以上、また、通常25以下、好ましくは14以下のアリールチオ基が挙げられる。具体例としては、フェニルチオ基、ナフチルチオ基、ピリジルチオ基等が挙げられる。

【0184】

アルキルスルホニル基及びアリールスルホニル基の具体例としては、メシル基、トシル基等が挙げられる。

10

20

30

40

50

スルホニルオキシ基の具体例としては、メシルオキシ基、トシルオキシ基等が挙げられる。

シリル基の具体例としては、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基など挙げられる。

【0185】

以上、 $R^{5\ 1}$ 、 $R^{6\ 1}$ 、 $R^{7\ 1}$ 及び $R^{5\ 2}$ 、 $R^{6\ 2}$ 、 $R^{6\ 3}$ 、 $R^{7\ 2} \sim R^{7\ 4}$ として例示した基は、本発明の趣旨に反しない限りにおいて、更に他の置換基によって置換されていてもよい。置換基の種類は特に制限されないが、例としては、上記 $R^{5\ 1}$ 、 $R^{6\ 1}$ 、 $R^{7\ 1}$ 及び $R^{5\ 2}$ 、 $R^{6\ 2}$ 、 $R^{6\ 3}$ 、 $R^{7\ 2} \sim R^{7\ 4}$ として各々例示した基の他、ハロゲン原子、シアノ基、チオシアノ基、ニトロ基等が挙げられる。中でも、イオン化合物（電子受容性化合物）の耐熱性及び電子受容性の妨げにならない観点から、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基が好ましい。

10

【0186】

式 (I-1) ~ (I-3) 中、 D^1 および D^2 は、周期表第3周期以降（第3 ~ 第6周期）の元素、 D^3 は周期表第2周期以降（第2 ~ 第6周期）の元素であって、 D^1 は、長周期型周期表の第17族に属する元素を表し、 D^2 は、第16族に属する元素を表し、 D^3 は、第15族に属する元素を表す。

中でも、電子受容性及び入手容易性の観点から、周期表の第5周期以前の元素が好ましい。即ち、 D^1 としてはヨウ素原子、臭素原子、塩素原子のうち何れかが好ましく、 D^2 としてはテルル原子、セレン原子、硫黄原子のうち何れかが好ましく、 D^3 としてはアンチモン原子、ヒ素原子、リン原子、窒素原子のうち何れかが好ましい。特に、電子受容性、化合物の安定性の面から、式 (I-1) における D^1 が臭素原子又はヨウ素原子である電子受容性化合物、式 (I-2) における D^2 がセレン原子又は硫黄原子である電子受容性化合物、式 (I-3) における D^3 が窒素原子である電子受容性化合物が好ましく、中でも、式 (I-1) における D^1 がヨウ素原子である電子受容性化合物、式 (I-3) における D^3 が窒素原子である電子受容性化合物が最も好ましい。

20

【0187】

式 (I-1) ~ (I-3) 中、 $Z_1^{n1-} \sim Z_3^{n3-}$ は、各々独立に、対アニオンを表す。対アニオンの種類は特に制限されず、単原子イオンであっても錯イオンであってもよい。但し、対アニオンのサイズが大きいほど負電荷が非局在化し、それに伴い正電荷も非局在化して電子受容能が大きくなるため、単原子イオンよりも錯イオンの方が好ましい。

30

$n_1 \sim n_3$ は、各々独立に、対アニオン $Z_1^{n1-} \sim Z_3^{n3-}$ のイオン価に相当する任意の正の整数である。 $n_1 \sim n_3$ の値は特に制限されないが、何れも1又は2であることが好ましく、1であることが最も好ましい。

【0188】

$Z_1^{n1-} \sim Z_3^{n3-}$ の具体例としては、水酸化物イオン、フッ化物イオン、塩化物イオン、臭化物イオン、ヨウ化物イオン、シアニ化物イオン、硝酸イオン、亜硝酸イオン、硫酸イオン、亜硫酸イオン、過塩素酸イオン、過臭素酸イオン、過ヨウ素酸イオン、塩素酸イオン、亜塩素酸イオン、次亜塩素酸イオン、リン酸イオン、亜リン酸イオン、次亜リン酸イオン、ホウ酸イオン、イソシアニ酸イオン、水硫化物イオン、テトラフルオロホウ酸イオン、ヘキサフルオロリン酸イオン、ヘキサクロロアンチモン酸イオン；酢酸イオン、トリフルオロ酢酸イオン、安息香酸イオン等のカルボン酸イオン；メタンスルホン酸、トリフルオロメタンスルホン酸イオン等のスルホン酸イオン；メトキシイオン、*tert*-ブトキシイオン等のアルコキシイオンなどが挙げられ、テトラフルオロホウ素酸イオン及びヘキフルオロホウ素酸イオンが好ましい。

40

【0189】

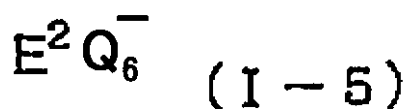
また、対アニオン $Z_1^{n1-} \sim Z_3^{n3-}$ としては、化合物の安定性、有機溶媒への溶解性の点で、下記式 (I-4) ~ (I-6) のいずれかで表される錯イオンが好ましく、サイズが大きいという点で、負電荷が非局在化し、それに伴い正電荷も非局在化して電子受容能が

50

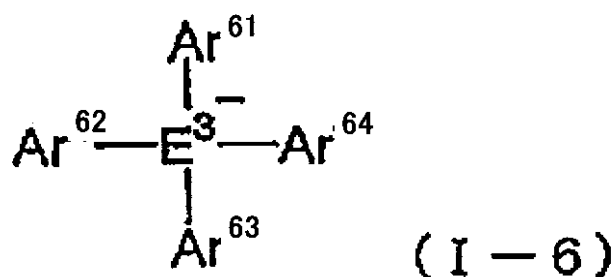
大きくなるため、式 (I-6) で表される錯イオンが更に好ましい。

【0190】

【化40】



10



20

【0191】

式 (I-4)、(I-6) 中、 E^1 及び E^3 は、各々独立に、長周期型周期表の第 13 族に属する元素を表す。中でもホウ素原子、アルミニウム原子、ガリウム原子が好ましく、化合物の安定性、合成及び精製のし易さの点から、ホウ素原子が好ましい。

式 (I-5) 中、 E^2 は、長周期型周期表の第 15 族に属する元素を表す。中でもリン原子、ヒ素原子、アンチモン原子が好ましく、化合物の安定性、合成及び精製が容易である点から、毒性の点から、リン原子が好ましい。

【0192】

30

式 (I-4)、(I-5) 中、Q は、フッ素原子、塩素原子、臭素原子などのハロゲン原子を表し、化合物の安定性、合成及び精製が容易である点から、フッ素原子、塩素原子であることが好ましく、フッ素原子であることが最も好ましい。

【0193】

式 (I-6) 中、 $\text{Ar}^{61} \sim \text{Ar}^{64}$ は、各々独立に、芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表す。芳香族炭化水素基、芳香族複素環基の例示としては、 R^{51} 、 R^{61} 及び R^{71} について先に例示したものと同様の、5 又は 6 員環の単環又は 2～4 縮合環由来の 1 価の基が挙げられる。中でも、化合物の安定性、耐熱性の点から、ベンゼン環、ナフタレン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、トリアジン環、キノリン環、イソキノリン環由来の 1 価の基が好ましい。

40

【0194】

$\text{Ar}^{61} \sim \text{Ar}^{64}$ として例示した芳香族炭化水素基、芳香族複素環基は、本発明の趣旨に反しない限りにおいて、更に別の置換基によって置換されていてもよい。置換基の種類は特に制限されず、任意の置換基が適用可能であるが、電子吸引性の基であることが好ましい。

【0195】

$\text{Ar}^{61} \sim \text{Ar}^{64}$ が有してもよい置換基として好ましい電子吸引性の基を例示するならば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；シアノ基；チオシアノ基；ニトロ基；メシル基等のアルキルスルホニル基；トシル基等のアリールスルホニル基；ホルミル基、アセチル基、ベンゾイル基等の、炭素数が通常 1 以上、通常 12 以下、好ましく

50

は6以下のアシル基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の、炭素数が通常2以上、通常10以下、好ましくは7以下のアルコキシカルボニル基；フェノキシカルボニル基、ピリジルオキシカルボニル基等の、炭素数が通常3以上、好ましくは4以上、通常25以下、好ましくは15以下の芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を有するアリーロキシカルボニル基；アミノカルボニル基；アミノスルホニル基；トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基等の、炭素数が通常1以上、通常10以下、好ましくは6以下の直鎖状、分岐鎖状又は環状のアルキル基にフッ素原子、塩素原子などのハロゲン原子が置換したハロアルキル基、などが挙げられる。

【0196】

中でも、 $Ar^{61} \sim Ar^{64}$ のうち少なくとも1つの基が、フッ素原子又は塩素原子を置換基として1つ又は2つ以上有することがより好ましい。特に、負電荷を効率よく非局在化する点、及び、適度な昇華性を有する点から、 $Ar^{61} \sim Ar^{64}$ の水素原子がすべてフッ素原子で置換されたパーフルオロアリール基であることが最も好ましい。パーフルオロアリール基の具体例としては、ペンタフルオロフェニル基、ヘプタフルオロ-2-ナフチル基、テトラフルオロ-4-ピリジル基等が挙げられる。

10

【0197】

本発明における電子受容性化合物の分子量は、通常100以上、好ましくは300以上、更に好ましくは400以上、また、通常5000以下、好ましくは3000以下、更に好ましくは2000以下の範囲である。電子受容性化合物の分子量が小さすぎると、正電荷及び負電荷の非局在化が不十分なため、電子受容能が低下するおそれがあり、電子受容性化合物の分子量が大きすぎると、電子受容性化合物自体が電荷輸送の妨げとなるおそれがある。

20

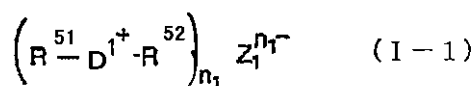
【0198】

以下に本発明における電子受容性化合物の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0199】

【表 1】

表 1



番号	D ¹	-R ⁵¹	-R ⁵²	Z ⁿ⁻
A-1	I			
A-2	I			
A-3	I			
A-4	I			
A-5	I			PF ₆ ⁻
A-6	I			SbF ₆ ⁻
A-7	I			BF ₄ ⁻
A-8	I			ClO ₄ ⁻
A-9	I			I ⁻
A-10	I			CF ₃ SO ₃ ⁻
A-11	I			CH ₃ CO ₂ ⁻
A-12	I			AsF ₆ ⁻
A-13	I			BF ₄ ⁻
A-14	I			

10

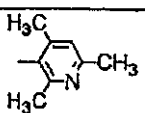
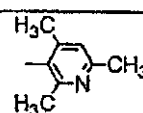
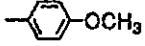
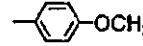
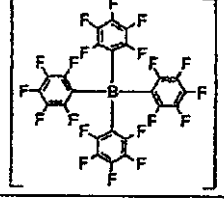
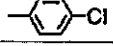
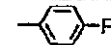
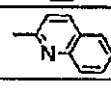
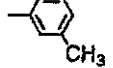
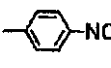
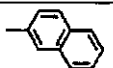
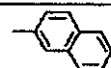
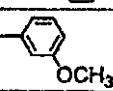
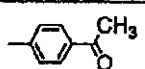
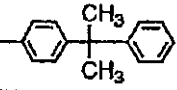
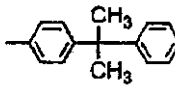
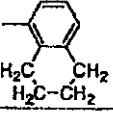
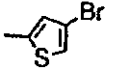
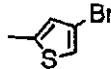
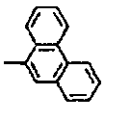
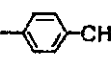
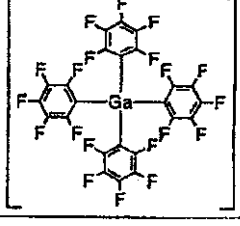
20

30

40

【表 2】

表2

番号	D ¹	-R ⁵¹	-R ⁵²	Z ⁿ⁻
A-15	I			NO ₃ ⁻
A-16	I			CH ₃ O-SO ₂ -O ⁻
A-17	I			PF ₆ ⁻
A-18	I			
A-19	I			
A-20	I			GaF ₄ ⁻
A-21	I			IO ₃ ⁻
A-22	I			Cl ⁻
A-23	I			Br ⁻
A-24	I			PF ₆ ⁻
A-25	I			CF ₃ CO ₂ ⁻
A-26	I			F ⁻
A-27	I			SO ₄ ²⁻
A-28	I			NO ₃ ⁻
A-29	I			BF ₄ ⁻
A-30	I			ClO ₄ ⁻
A-31	I			

10

20

30

40

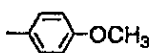
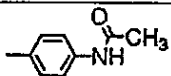
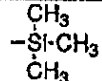
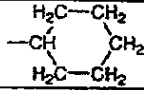
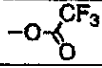
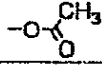
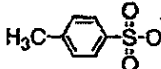
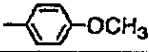
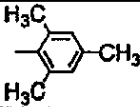
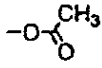
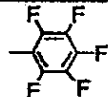
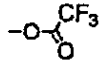
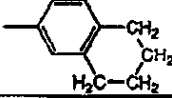
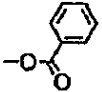
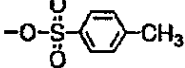
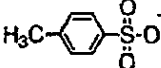
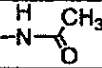
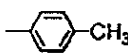
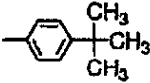
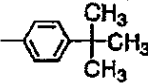
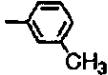
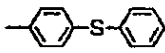
【表 3】

表3

番号	D ¹	-R ⁵¹	-R ⁵²	Z ⁿ⁻
A-32	I			NO ₃ ⁻
A-33	I			PF ₆ ⁻
A-34	I			Cl ⁻
A-35	I			CF ₃ CF ₂ SO ₃ ⁻
A-36	I			
A-37	I	-CH ₃		
A-38	I			NO ₃ ⁻
A-39	I		-CH=CH ₂	ClO ₄ ⁻
A-40	I		-CH ₂ -C≡CH	
A-41	I			PF ₆ ⁻
A-42	I	-CF ₂ CF ₃		
A-43	I			I ⁻
A-44	I	-CF ₃		BF ₄ ⁻
A-45	I		-CF ₂ CF ₂ CF ₃	CF ₃ SO ₃ ⁻
A-46	I		-CF ₃	GaF ₄ ⁻
A-47	I		-CF ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₃	
A-48	I		-CH ₃	Br ⁻

【表 4】

表 4

番号	D ¹	-R ⁵¹	-R ⁵²	Z ⁿ⁻
A-49	I			BrO_4^-
A-50	I	$-\text{CH}_2\text{CH}_3$		NO_2^-
A-51	I			CF_3SO_3^-
A-52	I	$-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}_2$		PO_4^{3-}
A-53	I	$-\text{CH}_2-\text{O}-\text{CH}_3$		OH^-
A-54	I			CF_3CO_2^-
A-55	I			CH_3CO_2^-
A-56	I		$-\text{OH}$	
A-57	I	$-\text{OCH}_2\text{CH}_3$		BF_4^-
A-58	I			PF_6^-
A-59	I		$-\text{OH}$	OH^-
A-60	I			CF_3CO_2^-
A-61	I			NO_3^-
A-62	I			
A-63	I	$-\text{CH}_2\text{CH}_3$		SbF_6^-
A-64	I		$-\text{OCH}_3$	$\left[(\text{C}_6\text{F}_5)_3\text{B} \begin{array}{c} \text{F} \quad \text{F} \\ \quad \\ \text{C}_6\text{F}_4 \\ \quad \\ \text{F} \quad \text{F} \end{array} \text{B}(\text{C}_6\text{F}_5)_3 \right]^{2-}$
A-65	Br			BF_4^-
A-66	Br			PF_6^-
A-67	Br			Br^-
A-68	Br			$\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_3^-$

【表 5】

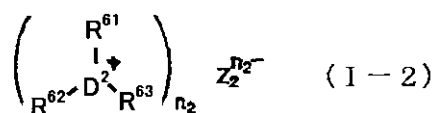
表 5

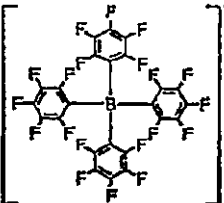
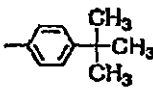
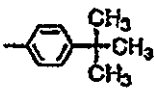
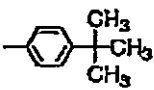
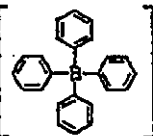
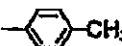
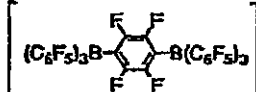
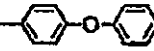
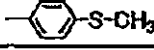
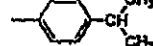
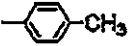
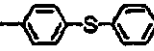
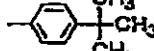
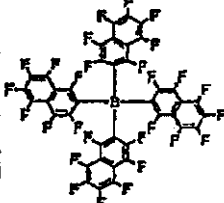
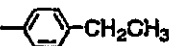
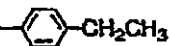
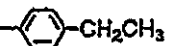
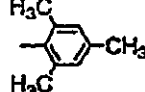
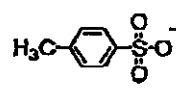
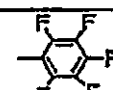
番号	D ¹	-R ⁵¹	-R ⁵²	Z ⁿ⁻
A-69	Br			
A-70	Br			ClO_4^-
A-71	Br		$-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_3$	GaF_4^-
A-72	Br		$-\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_3$	SO_4^{2-}
A-73	Br			CF_3CO_2^-
A-74	Br	$-\text{CH}=\text{CH}_2$		
A-75	Cl			PF_6^-
A-76	Cl	$-\text{CH}_2\text{CH}_3$		Cl^-
A-77	Cl			CF_3CO_2^-

番号	$\text{R}^{51} - \text{D}^{1+} - \text{R}^{52}$	Z ⁿ⁻
A-79		SO_4^{2-}
A-80		
A-81		BF_4^-
A-82		PF_6^-
A-83		CF_3CO_2^-
A-84		

【表 6】

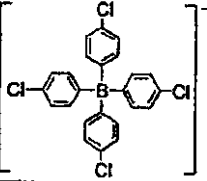
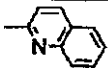
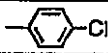
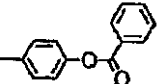
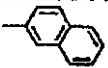
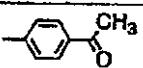
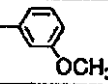
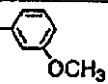
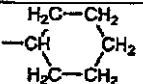
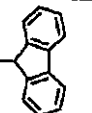
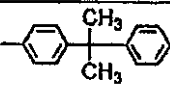
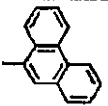
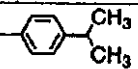
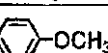
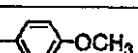
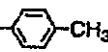
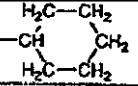
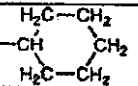
表 6



番号	D ²	-R ⁶¹	-R ⁶²	-R ⁶³	Z ⁿ⁻
B-1	S				
B-2	S				
B-3	S				
B-4	S				CF ₃ SO ₃ ⁻
B-5	S				PF ₆ ⁻
B-6	S			-CH ₃	CF ₃ SO ₃ ⁻
B-7	S				BF ₄ ⁻
B-8	S				ClO ₄ ⁻
B-9	S				PF ₆ ⁻
B-10	S				
B-11	S				CH ₃ CO ₂ ⁻
B-12	S				AsF ₆ ⁻
B-13	S				
B-14	S				NO ₃ ⁻

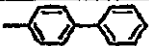
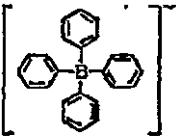
【表 7】

表7

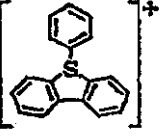
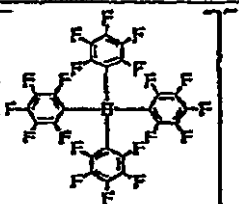
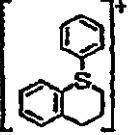
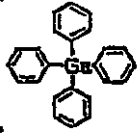
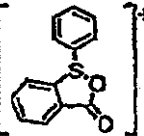
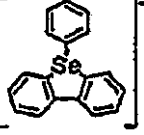
番号	D ²	-R ⁶¹	-R ⁶²	-R ⁶³	Z ⁿ⁻
B-15	S		-CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃		
B-16	S	-CH ₃	-CH ₃		PF ₆ ⁻
B-17	S				Cl ⁻
B-18	S				
B-19	S				GaF ₄ ⁻
B-20	S				NO ₃ ⁻
B-21	S		-CH ₂ -CH=CH ₂		CF ₃ CO ₂ ⁻
B-22	S			-CH=CH ₂	Cl ⁻
B-23	S			-CH ₃	SbF ₆ ⁻
B-24	S				PF ₆ ⁻
B-25	S				SO ₄ ²⁻
B-26	S	-CH ₂ CH ₃		-CH ₂ CH ₃	NO ₃ ⁻
B-27	S				PF ₆ ⁻
B-28	S		-CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃	-CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃	BF ₄ ⁻
B-29	S	-CH ₃	-CH ₃	-CH ₂ CH ₂ NH ₂	I ⁻
B-30	S				BF ₄ ⁻
B-31	S				CF ₃ CO ₂ ⁻
B-32	Se				ClO ₄ ⁻
B-33	Se				PF ₆ ⁻
B-34	Se		-CH ₃	-CH ₃	I ⁻
B-35	Se				CF ₃ CF ₂ SO ₃ ⁻

【表 8】

表8

符号	D ²	-R ⁶¹	-R ⁶²	-R ⁶³	Z ^{A-}
B-36	Te				PF ₆ ⁻
B-37	Ta	-CH ₃		-CH ₃	
B-38	Te				NO ₃ ⁻

10

符号	$\begin{array}{c} R^{61} \\ \\ R^{62}-D_2^+-R^{63} \end{array}$	Z ^{A-}
B-39		
B-40		
B-41		PF ₆ ⁻
B-42		SF ₆ ⁻
B-43		NO ₃ ⁻

20

30

40

【0207】

【表 9】

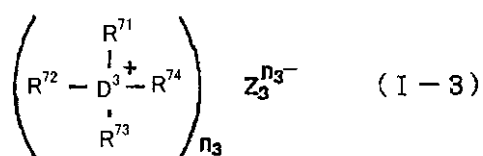


表9

番号	D ³	-R ⁷¹	-R ⁷²	-R ⁷³	-R ⁷⁴	Z ⁿ⁻
C-1	P					
C-2	P					PF ₆ ⁻
C-3	P					
C-4	P					CF ₃ SO ₃ ⁻
C-5	P	-CH ₃				BF ₄ ⁻
C-6	P		-CH ₂ -CH=CH ₂			ClO ₄ ⁻
C-7	P			-CH ₂ -C≡CH		PF ₈ ⁻
C-8	P					AsF ₆ ⁻
C-9	P					
C-10	P					
C-11	P					Cl ⁻
C-12	P					AsF ₆ ⁻
C-13	P					Br ⁻
C-14	P					NO ₃ ⁻

10

20

30

40

【表 10】

表10

番号	D ³	-R ⁷¹	-R ⁷²	-R ⁷³	-R ⁷⁴	Z ⁿ⁻
C-15	P				-CH=CH ₂	CF ₃ CF ₂ SO ₃ ⁻
C-16	P	-(CH ₂) ₅ CH ₃				PF ₆ ⁻
C-17	P					I ⁻
C-18	P	-CH ₃			-CH ₃	I ⁻
C-19	P					
C-20	P					NO ₃ ⁻
C-21	P					
C-22	P			-CH ₂ CH ₃	-CH ₂ CH ₃	SO ₄ ²⁻
C-23	P					PF ₆ ⁻
C-24	P					ClO ₄ ⁻
C-25	As					BF ₄ ⁻
C-26	As					NO ₃ ⁻
C-27	As					PF ₆ ⁻
C-28	As					BF ₄ ⁻
C-29	Sb	-CH ₃	-CH ₃			I ⁻
C-30	Sb					BF ₄ ⁻

10

20

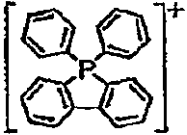
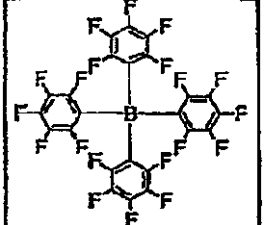
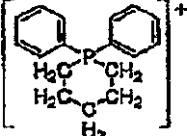
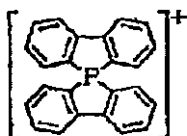
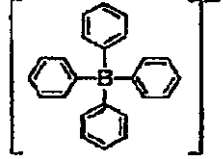
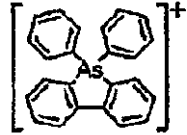
30

40

【0209】

【表 1 1】

表 11

番号	$\begin{array}{c} R^{71} \\ \\ R^{72}-D^3-R^{74} \\ \\ R^{73} \end{array}$	Z^{n-}
C-31		
C-32		NO_3^-
C-33		
C-34		BF_4^-

10

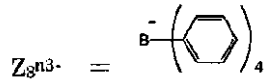
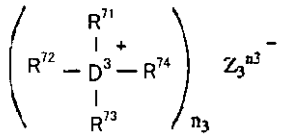
20

【 0 2 1 0 】

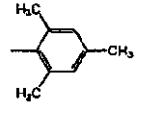
30

【表 1 2】

表12



10

番号	D ³	-R ⁷¹ (有機基)	-R ⁷² (置換基)	-R ⁷³ (置換基)	-R ⁷⁴ (置換基)
D-1	N	-CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	-H
D-2	N	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-H
D-3	N	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-H
D-4	N	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-H
D-5	N	-t-butyl	-t-butyl	-t-butyl	-H
D-6	N	-CH ₃	-CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-H
D-7	N		-CH ₃	-CH ₃	-H
D-8	N		-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-H
D-9	N		-CH ₃	-CH ₃	-H
D-10	N		-CH ₃	-CH ₃	-H
D-11	N	-CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	-CH ₃
D-12	N	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃
D-13	N	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃
D-14	N	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃

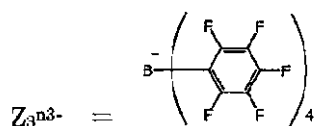
20

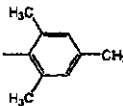
30

【 0 2 1 1 】

【表 1 3】

表 1 3



番号	D ³	-R ⁷¹ (有機基)	-R ⁷² (置換基)	-R ⁷³ (置換基)	-R ⁷⁴ (置換基)
D-15	N	-CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	-H
D-16	N	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-H
D-17	N	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-H
D-18	N	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-H
D-19	N	-t-butyl	-t-butyl	-t-butyl	-H
D-20	N	-CH ₃	-CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-H
D-21	N		CH ₃	CH ₃	-H
D-22	N		-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-H
D-23	N		-CH ₃	-CH ₃	-H
D-24	N		-CH ₃	-CH ₃	-H
D-25	N	-CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	-CH ₃
D-26	N	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃	-CH ₂ -CH ₃
D-27	N	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃	-(CH ₂) ₂ -CH ₃
D-28	N	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-(CH ₂) ₃ -CH ₃

【0 2 1 2】

上記具体例のうち、電子受容性、耐熱性、有機溶媒に対する溶解性の点で、好ましくは、A-1~48、A-54、A-55、A-60~62、A-64~75、A-79~83、B-1~20、B-24、B-25、B-27、B-30~37、B-39~43、C-1~10、C-19~21、C-25~27、C-30、C-31、D-15~28の化合物であり、より好ましくは、A-1~9、A-12~15、A-17、A-19、A-24、A-29、A-31~33、A-36、A-37、A-65、A-66、A-69、A-80~82、B-1~3、B-5、B-7~10、B-16、B-30、B-33、B-39、C-1~3、C-5、C-10、C-21、C-25、C-31、D-17~28の化合物であり、最も好ましくは、A-1~7、A-80、D-21~24の化合物である。

【0 2 1 3】

以上説明した電子受容性化合物を製造する方法は特に制限されず、各種の方法を用いて製造することが可能である。例としては、Chem. Rev.、66巻、243頁、1966年、及び、J. Org. Chem.、53巻、5571頁、1988年に記載の方法等が挙げられる。

【0214】

本発明の有機電界発光素子用組成物は、上述の電子受容性化合物のうち何れか一種を単独で含有していてもよく、二種以上を任意の組み合わせ及び比率で含有していてもよい。また、式（I-1）～（I-3）のうち何れか一つの式に該当する電子受容性化合物を二種以上組み合わせてもよく、各々異なる式に該当する二種以上の電子受容性化合物を組み合わせてもよい。

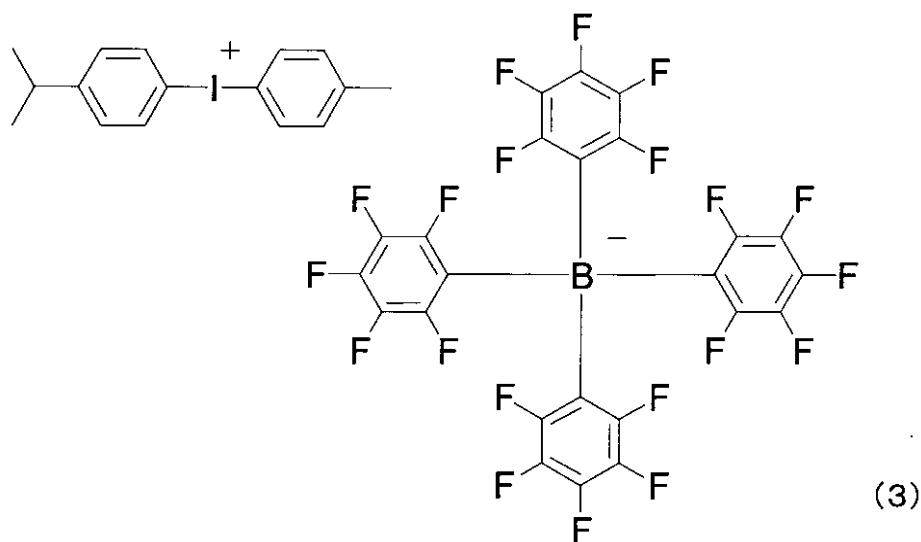
【0215】

本発明の有機電界発光素子用組成物において、電子受容性化合物としては特に好ましくは以下の式（3）で表される化合物が用いられる。

【0216】

10

【化41】



20

【0217】

本発明の有機電界発光素子用組成物における上述の電子受容性化合物の含有量は、先述の芳香族アミン系ポリマーに対する値で、通常0.1重量%以上、好ましくは1重量%以上、また、通常100重量%以下、好ましくは40重量%以下である。電子受容性化合物の含有率が少な過ぎると駆動電圧が上昇するおそれがあり、また電子受容性化合物の含有率が多過ぎると成膜性が低下するおそれがある。二種以上の電子受容性化合物を併用する場合には、これらの合計の含有量が上記範囲に含まれるようにする。

30

【0218】

<有機溶媒>

本発明の有機電界発光素子用組成物は、有機溶媒として前述の溶媒（a）と溶媒（b）を含有することを必須とするが、本発明の有機電界発光素子用組成物に含有されるこれらの有機溶媒としては、本発明における芳香族アミン系ポリマーを、通常0.05重量%以上、好ましくは0.5重量%以上、さらに好ましくは1重量%以上溶解する有機溶媒であることが好ましい。また、電子受容性化合物を0.005重量%以上溶解することが好ましく、0.05重量%以上溶解することがより好ましく、0.5重量%以上溶解することがさらに好ましい。

40

【0219】

有機溶媒としては、具体的には、芳香族系有機溶媒、含ハロゲン有機溶媒、エーテル系有機溶媒、及びエステル系有機溶媒が挙げられる。

【0220】

芳香族系有機溶媒の具体例としては、トルエン、キシレン、メチシレン、シクロヘキシルベンゼン、ペンタフルオロメトキシベンゼン、エチル（ペンタフルオロベンゾエート）等、

50

含ハロゲン有機溶媒の具体例としては、1, 2-ジクロロエタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等、

エーテル系有機溶媒の具体例としては、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、プロピレングリコール-1-モノメチルエーテルアセタート (PGMEA) 等の脂肪族エーテル；1, 2-ジメトキシベンゼン、1, 3-ジメトキシベンゼン、アニソール、フェネトール、2-メトキシトルエン、3-メトキシトルエン、4-メトキシトルエン、2, 3-ジメチルアニソール、2, 4-ジメチルアニソール、ジフェニルエーテル等の芳香族エーテル等、

エステル系有機溶媒の具体例としては、酢酸エチル、酢酸n-ブチル、乳酸エチル、乳酸n-ブチル等の脂肪族エステル；酢酸フェニル、プロピオン酸フェニル、安息香酸メチル、安息香酸エチル、安息香酸プロピル、安息香酸n-ブチル等の芳香族エステル等が挙げられる。

10

【0221】

芳香族アミン系ポリマーを溶解させる必要があること、これら芳香族アミン系ポリマー等の正孔輸送材料と電子受容性化合物の混合から生じる正孔注入・輸送性材料のカチオンラジカルを溶解する能力が高いことから、好ましくは、エーテル系有機溶媒、及びエステル系有機溶媒が挙げられる。

これらは1種で用いてもよく、2種以上の混合有機溶媒としてもよい。

【0222】

本発明の有機電界発光素子用組成物に含有される有機溶媒として、25℃における蒸気圧が2 mmHg以上、好ましくは3 mmHg以上、より好ましくは4 mmHg以上（但し、上限値は好ましくは10 mmHg以下である。）である有機溶媒と、25℃における蒸気圧が2 mmHg未満、好ましくは1 mmHg以下、より好ましくは0.5 mmHg以下である有機溶媒との混合有機溶媒が挙げられる。

20

【0223】

また、これらの有機溶媒の組成物中の含有量については前述の通りである。

【0224】

なお、有機溶媒として、前述した有機溶媒以外にも、必要に応じて、各種の他の有機溶媒を含んでもよい。このような他の有機溶媒としては、例えば、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド等のアミド系有機溶媒、ジメチルスルホキシド等が挙げられる。また、レベリング剤や消泡剤等の各種添加剤を含んでもよい。

30

【0225】

なお、水分は有機電界発光素子の性能劣化、中でも特に連続駆動時の輝度低下を促進する可能性があることが広く知られており、塗膜中に残留する水分をできる限り低減するために、これらの有機溶媒の中でも、25℃における水の溶解度が1重量%以下であるものが好ましく、0.1重量%以下である有機溶媒がより好ましい。また、有機溶媒として、20℃における表面張力が、通常40 dyne/cm未満、好ましくは36 dyne/cm以下、より好ましくは33 dyne/cm以下である有機溶媒が挙げられる。有機溶媒としてはまた、25℃における蒸気圧が10 mmHg以下、好ましくは5 mmHg以下で、通常0.1 mmHg以上の有機溶媒が挙げられる。このような有機溶媒を使用することにより、有機電界発光素子を湿式成膜法により製造するプロセスに好適な、また、芳香族アミン系ポリマーの性質に適した組成物を調製することができる。

40

【0226】

<有機電界発光素子用組成物の物性について>

本発明の有機電界発光素子用組成物の粘度は、固形分の濃度に依存するが、通常15 mPas以下、好ましくは10 mPas以下、さらに好ましくは8 mPas以下、また通常2 mPas以上、好ましくは3 mPas以上、さらに好ましくは5 mPas以上である。

この上限値を超えると、湿式成膜法にて膜形成時、均一な成膜ができないおそれがある。また、この下限値を下回ると成膜できないおそれがある。

【0227】

50

尚、粘度の測定方法は、回転式粘度測定装置を用いて測定した。通常、粘度は、温度及び測定回転数に依存する。上記値は、測定温度 23℃、測定回転数 20 回転の一定条件で測定での測定値である。

【0228】

<添加剤>

本発明の有機電界発光素子用組成物は、必要に応じ、レベリング剤や消泡剤等の塗布性改良剤などの各種添加剤等を含んでいてもよい。この場合は、有機溶媒としては、芳香族アミン系ポリマーと添加剤の双方を 0.05 重量%以上、好ましくは 0.5 重量%以上、さらに好ましくは 1 重量%以上溶解する有機溶媒を使用することが好ましい。

【0229】

<用途>

本発明の有機電界発光素子用組成物は、保存安定性が高く、湿式成膜法で正孔注入層及び／又は正孔輸送層を形成する場合において、均一に成膜可能であり、好ましい。

また、本発明における湿式成膜法とは、スピンコート法、ディップコート法、ダイコート法、バーコート法、ブレードコート法、ロールコート法、スプレーコート法、キャピラリーコート法、組成物ジェット法、スクリーン印刷法、グラビア印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷等の有機溶媒を含有する組成物を用いて成膜する方法をいう。パターンニングのし易さという点で、ダイコート法、ロールコート法、スプレーコート法、組成物ジェット法、フレキソ印刷法が好ましい。

【0230】

<有機電界発光素子用組成物の製造方法>

本発明の有機電界発光素子用組成物の製造方法の一例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

特に、本発明の有機電界発光素子用組成物は、以下に記載する方法、特に好ましい方法を組み合わせるなどして用いることにより製造することができる。

【0231】

[1] 添加形態・方法

本発明の有機電界発光素子用組成物に含有される、芳香族アミン系ポリマー、電子受容性化合物及び有機溶媒を混合する場合、混合する芳香族アミン系ポリマー及び電子受容性化合物は、各々独立に、固体であってもよく、また溶液であってもよい。

芳香族アミン系ポリマー及び電子受容性化合物を共に溶液状態で混合することが好ましい。或いは、芳香族アミン系ポリマー及び電子受容性化合物の何れか一方が固体状態で、何れか一方が溶液状態で混合することが好ましい。この場合、固体の溶解を確認しながら添加できる点で溶液に、固体を入れることが好ましい。

【0232】

さらに芳香族アミン系ポリマー及び電子受容性化合物が共に固体で、これらを粉碎混合した後に、有機溶媒で溶解することが好ましい。

上記の通り固体で混合する場合、粒径は、通常 5 cm 以下、好ましくは 1 cm 以下、より好ましくは 5 mm 以下、また通常 0.5 mm 以上である。

【0233】

[2] 溶解工程

本発明の有機電界発光素子用組成物の好ましい製造方法においては、通常溶解工程を有する。

【0234】

溶解工程は、固体を有機溶媒に攪拌し、固体が浮遊していることが目視で確認できなくなるようにする工程をいう。

【0235】

溶解工程における温度は、通常 20℃以上、好ましくは 40℃以上、また通常有機溶媒の沸点以下、好ましくは有機溶媒の沸点より 10℃以上低い温度である。この上限値を上回ると、有機溶媒が一部蒸発し濃度が変化するおそれがあり、またこの下限値を下回ると

10

20

30

40

50

使用有機溶媒が固化、あるいは溶解度が低下するために所望の濃度が得られないおそれがある。

【0236】

溶解工程における雰囲気は、本発明の効果を損なわない限りは特に制限はないが、不活性ガスが挙げられる。不活性ガスとしては、例えば、窒素、アルゴン、などが挙げられ、取り扱い容易な点で、窒素が好ましい。

【0237】

[3] 超音波処理・光照射処理・加熱処理

本発明の有機電界発光素子用組成物を得るための製造方法としては、特に、超音波処理、光照射処理、加熱処理の少なくとも一つの処理を含むことが好ましい。

10

【0238】

また、処理を行う時期は、本発明の効果を損なわない限り特に制限はなく、溶解工程で行ってもよく、また溶解工程の後に行ってもよい。

尚、これらの処理は、いずれか一種の処理を単独で行ってもよく、また併用して処理を行ってもよい。

【0239】

(超音波処理)

超音波処理を行う場合、振動子28kHzを用いることが好ましい。

超音波処理における超音波時間は、通常5分以上、好ましくは10分以上、また通常2時間以下、好ましくは1時間以下である。

20

この上限値を上回ると、ポリマーが分解するおそれがあり、またこの下限値を下回ると溶解が不十分となるおそれがある。

【0240】

(光照射処理)

光照射処理を行う場合、高圧水銀灯を用いることが好ましい。高圧水銀灯は404.7nm、435.8nm、546.1nm、577.0nm、及び579.1nmの輝線スペクトルからなる緑がかった青白色(5,700K)の光源で、253.7nm、365.0nmの紫外線照射を伴う。

【0241】

紫外線の照射方法としては、特に限定されるものではないが、上記調製した組成物に直接照射してもよいし、適当な容器に入れて紫外線を照射してもよい。容器が紫外線を透過する場合は容器を密閉した状態で紫外線を照射してもよいし、容器が紫外線を遮蔽する場合は、例えば蓋を開封し、開口部から紫外線を照射してもよい。紫外線照射に使用する装置としては、特に限定はされないが、キセノンランプ、水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯、メタルハライドランプ、紫外線蛍光灯、D2ランプ、カーボンアーク灯、LEDなどが用いられる。

30

【0242】

また、組成物が溶媒を含む場合の組成物の液温度は、特に限定されるものではないが、通常、常温であるが、さらに冷却したり、加熱したりしてもよい。

紫外線の照射量は、通常10mJ/cm²以上、好ましくは100mJ/cm²以上、より好ましくは600mJ/cm²以上、通常50000mJ/cm²以下、好ましくは10000mJ/cm²以下、より好ましくは5000mJ/cm²以下である。上記範囲内であると、芳香族アミン系ポリマーから電子受容性化合物への電子移動度が十分であり、また芳香族アミン系ポリマーが劣化しにくくなるため好ましい。

40

【0243】

通常、紫外線は組成物表面で吸収されるため、紫外線照射後に組成物を攪拌して均一にしたり、攪拌しながら紫外線を照射することが好ましい。

紫外線の照射面積としては、組成物の入った容器全体に紫外線が照射されることが好ましいが、組成物の一部を照射してもよい。その場合は、紫外線照射後に組成物を攪拌することが好ましく、組成物を攪拌しながら照射することも好ましい。

50

【0244】

(加熱処理)

加熱処理における加熱手段は、本発明の効果を損なわない限り、公知の技術を用いることができる。

具体的には、芳香族アミン系ポリマー、電子受容性化合物及び有機溶媒を加熱可能な容器に入れ、攪拌しながら、加熱バスにより温度を調節し、加熱攪拌する方法が挙げられる。加熱バスとしては、水バス、オイルバス等が用いられる。

【0245】

また、芳香族アミン系ポリマー、電子受容性化合物及び有機溶媒を加熱容器に入れ攪拌した後、一定の温度制御可能な恒温槽内に置くことにより加熱処理できる。安全を考慮した観点から、加熱バスを用いた加熱攪拌による方法が好ましい。

加熱処理における加熱温度は、通常40℃以上、好ましくは80℃以上、また、通常、有機溶媒の沸点以下、好ましくは有機溶媒の沸点より10℃以上低い温度である。

【0246】

ここで上限値である沸点は、2種以上の有機溶媒のうちの最も低い沸点の有機溶媒における沸点が基準となる。

この上限値を上回ると、有機溶媒が突沸するおそれがありかつ有機溶媒の蒸発により仕込み時の濃度変化をきたす。またこの下限値を下回ると加熱処理の効果がなく、溶解不十分になるおそれがある。

【0247】

加熱処理における加熱時間は、通常1時間以上、好ましくは5時間以上、また通常36時間以下、好ましくは24時間以下である。この上限値を上回ると、有機溶媒が蒸発するおそれがあり、またこの下限値を下回ると溶解が不十分となるおそれがある。

【0248】

超音波処理、光照射処理又は加熱処理のうち少なくとも何れか一種の処理を行うことで、本発明の有機電界発光素子用組成物を製造できる理由は以下の様に推測される。

【0249】

超音波処理、光照射処理又は加熱処理の何れか一種の処理を行うことで、芳香族アミン系ポリマーの凝集状態が緩和されることにより、芳香族アミン系ポリマーと電子受容性化合物が近接し易くなる。この近接により、芳香族アミン系ポリマーは分子内でカチオンラジカル状態となり、アニオンラジカルである電子受容性化合物とイオン対状態となり、ポリマーの凝集や、電子受容性化合物の凝集が生じにくくなり、粒径がマイクロオーダーである大きな凝集体を含む割合が小さい電荷輸送膜用組成物が製造できる。

【0250】

〔4〕濾過工程

本発明の有機電界発光素子用組成物の製造方法においては、濾過工程を含むことが好ましい。また、本発明における濾過工程は、溶解工程の後に行うことが好ましい。

濾過工程に用いるフィルターの孔は、通常5μm以下、好ましくは0.5μm以下、また通常0.02μm以上、好ましくは0.1μm以上である。

この上限値を上回ると、不溶物が混入するおそれがあり、また、この下限値を下回ると濾過ができず目詰まりするおそれがある。

【0251】

<成膜方法>

前述の如く、有機電界発光素子は、多数の有機化合物からなる層を積層して形成するため、膜質が均一であることが非常に重要である。湿式成膜法で層形成する場合、その材料や、下地の性質によって、スピンコート法、スプレー法などの塗布法や、インクジェット法、スクリーン法などの印刷法等、公知の成膜方法が採用できる。

【0252】

湿式成膜法を用いる場合、本発明の有機電界発光素子用組成物を、スピンコート法やディップコート法等の手法により、形成する層の下層に該当する層上に塗布し、乾燥して層

10

20

30

40

50

を形成する。

本発明における芳香族アミン系ポリマーが、不溶化基を有さない場合は、塗布後、通常加熱等により有機電界発光素子用組成物の膜を乾燥させる。乾燥させる方法としては、通常、加熱工程が行なわれる。加熱工程において使用する加熱手段の例を挙げると、クリーンオープン、ホットプレート、赤外線、ハロゲンヒーター、マイクロ波照射などが挙げられる。中でも、膜全体に均等に熱を与えるためには、クリーンオープン及びホットプレートが好ましい。

【0253】

加熱工程における加熱温度は、本発明の効果を著しく損なわない限り、有機電界発光素子用組成物に用いた溶媒の沸点以上の温度で加熱することが好ましい。また、層中に前述した解離性ポリマーが含有される場合、解離性基が解離する温度以上の温度で加熱することが好ましい。また、有機電界発光素子用組成物には溶媒が2種類以上含まれているので、少なくとも1種類がその溶媒の沸点以上の温度で加熱されるのが好ましい。溶媒の沸点上昇を考慮すると、加熱工程においては、好ましくは120℃以上、好ましくは410℃以下で加熱することが好ましい。

【0254】

また、加熱の他に、光などの活性エネルギー照射による場合には、超高圧水銀ランプ、高圧水銀ランプ、ハロゲンランプ、赤外ランプ等の紫外・可視・赤外光源を直接用いて照射する方法、あるいは前述の光源を内蔵するマスクアライナ、コンベア型光照射装置を用いて照射する方法などが挙げられる。光以外の活性エネルギー照射では、例えばマグネ

【0255】

照射時間としては、不溶化反応が十分に起こるために必要な条件を設定することが好ましいが、通常、0.1秒以上、好ましくは10時間以下照射される。

加熱及び光などの活性エネルギー照射は、それぞれ単独、あるいは組み合わせて行ってもよい。組み合わせる場合、実施する順序は特に限定されない。

加熱及び光などの活性エネルギー照射は、実施後に層に含有する水分及び／又は表面に吸着する水分の量を低減するために、窒素ガス雰囲気等の水分を含まない雰囲気で行うことが好ましい。同様の目的で、加熱及び／又は光などの活性エネルギー照射を組み合わせ

【0256】

〔有機電界発光素子〕

本発明の有機電界発光素子は、基板上に、少なくとも陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層及び陰極を積層した有機電界発光素子において、前記正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくとも1層が、本発明の有機電界発光素子用組成物を用いた湿式製膜法により形成されたことを特徴とする。

本発明の有機電界発光素子用組成物により形成される層が陽極に隣接された層である有機電界発光素子は、短絡やダークスポットが生じないという効果がある。その為、通常、本発明の有機電界発光素子用組成物により形成された層は、正孔注入層であることが好ましい。また、正孔注入層、正孔輸送層、及び発光層の全てが湿式成膜法で形成されることが好ましい。また、本発明の有機電界発光素子は、無機層を有していてもよい。

【0257】

以下に、本発明の有機電界発光素子の層構成の一例及びその一般的形成方法等について、図1を参照して説明する。

図1は本発明の有機電界発光素子の構造例を示す断面の模式図であり、図1において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は正孔阻止層、7は電子輸送層、8は電子注入層、9は陰極を各々表す。

【0258】

なお、このような有機電界発光素子において、陽極と陰極との間の有機層を湿式成膜法で形成する場合は、以下に記載の各層の材料を有機溶媒へ分散又は溶解させて湿式成膜用組成物を作製し、該湿式成膜用組成物を用いて形成すればよい。

【0259】

{基板}

基板は有機電界発光素子の支持体となるものであり、石英やガラスの板、金属板や金属箔、プラスチックフィルムやシート等が用いられる。特にガラス板や、ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネート、ポリスルホン等の透明な合成樹脂の板が好ましい。合成樹脂基板を使用する場合にはガスバリア性に留意する必要がある。基板のガスバリア性が小さすぎると、基板を通過した外気により有機電界発光素子が劣化することがあるので好ましくない。このため、合成樹脂基板の少なくとも片面に緻密なシリコン酸化膜等を設けてガスバリア性を確保する方法も好ましい方法の一つである。

10

【0260】

{陽極}

陽極は発光層側の層への正孔注入の役割を果たすものである。

この陽極は、通常、アルミニウム、金、銀、ニッケル、パラジウム、白金等の金属、インジウム及び／又はスズの酸化物等の金属酸化物、ヨウ化銅等のハロゲン化金属、カーボンブラック、或いは、ポリ(3-メチルチオフェン)、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性高分子等により構成される。

【0261】

陽極の形成は通常、スパッタリング法、真空蒸着法等により行われることが多い。また、銀等の金属微粒子、ヨウ化銅等の微粒子、カーボンブラック、導電性の金属酸化物微粒子、導電性高分子微粉末等を用いて陽極を形成する場合には、適当なバインダー樹脂溶液に分散させて、基板上に塗布することにより陽極を形成することもできる。さらに、導電性高分子の場合は、電解重合により直接基板上に薄膜を形成したり、基板上に導電性高分子を塗布して陽極を形成したりすることもできる(Appl. Phys. Lett., 60巻, 2711頁, 1992年)。

20

【0262】

陽極は通常は単層構造であるが、所望により複数の材料からなる積層構造とすることも可能である。

30

陽極の厚みは、必要とする透明性により異なる。透明性が必要とされる場合は、可視光の透過率を、通常60%以上、好ましくは80%以上とすることが好ましい。この場合、陽極の厚みは通常5nm以上、好ましくは10nm以上であり、また、通常1000nm以下、好ましくは500nm以下程度である。不透明でよい場合は陽極の厚みは任意であり、陽極は基板と同一でもよい。また、さらには、上記の陽極の上に異なる導電材料を積層することも可能である。

【0263】

陽極に付着した不純物を除去し、イオン化ポテンシャルを調製して正孔注入性を向上させることを目的に、陽極表面を紫外線(UV)／オゾン処理したり、酸素プラズマ、アルゴンプラズマ処理したりすることは好ましい。

40

【0264】

{正孔注入層}

正孔注入層は、陽極から発光層へ正孔を輸送する機能を有する層であり、通常、陽極上に形成される。

【0265】

この機能を発現するため、正孔注入層は、本発明の有機電界発光素子用組成物により形成された層であることが好ましい。

【0266】

{成膜方法}

本発明の有機電界発光素子用組成物を調製後、この組成物を湿式成膜により、正孔注入

50

層の下層に該当する層（通常は、陽極）上に湿式成膜し、乾燥することにより正孔注入層を形成する。

【0267】

湿式成膜における温度は、組成物中に結晶が生じることによる膜の欠損を防ぐため、10℃以上が好ましく、50℃以下が好ましい。

湿式成膜における相対湿度は、本発明の効果を著しく損なわない限り限定されないが、通常0.01ppm以上、また通常80%以下である。

成膜後、通常加熱等により本発明の有機電界発光素子用組成物の膜を乾燥させる。乾燥する方法が加熱である場合、加熱手段は特に制限されないが、例えば、クリーンオープン、ホットプレート、赤外線、ハロゲンヒーター、マイクロ波照射などが挙げられる。中でも、膜全体に均等に熱を与えるためには、クリーンオープン及びホットプレートが好ましい。

10

【0268】

また、加熱温度は、本発明の効果を著しく損なわない限り、本発明の有機電界発光素子用組成物に用いた有機溶媒のうちの、少なくとも1種類がその有機溶媒の沸点以上又は沸点に近い温度で加熱されるのが好ましい。有機溶媒の沸点上昇を考慮すると、加熱工程においては、好ましくは200℃以上、より好ましくは220℃以上、好ましくは410℃以下で加熱することが好ましい。

【0269】

加熱温度が本発明の有機電界発光素子用組成物の有機溶媒の沸点以上であり、かつ湿式成膜により形成された膜が十分に不溶化されれば、加熱時間は特に制限されないが、好ましくは10秒以上、また通常180分以下である。上記範囲内であると、均一な膜が形成される傾向があり好ましい。加熱は2回に分けて行ってもよい。

20

上記の方法で形成した膜厚は、通常1nm以上、好ましくは5nm以上、また、通常1000nm以下、好ましくは500nm以下である。

【0270】

{正孔輸送層}

本発明の有機電界発光素子は通常正孔輸送層を有する。

本発明に係る正孔輸送層の形成方法は特に制限はないが、ダークスポット低減の観点から正孔輸送層を湿式成膜により形成することが好ましい。

30

正孔輸送層は、図1に示す構成の有機電界発光素子の場合は正孔注入層の上に形成することができる。

【0271】

正孔輸送層に利用できる材料としては、正孔輸送性が高く、かつ、注入された正孔を効率よく輸送することができる材料であることが好ましい。そのために、イオン化ポテンシャルが小さく、可視光の光に対して透明性が高く、正孔移動度が大きく、安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくいことが好ましい。また、多くの場合発光層に接するため、発光層からの発光を消光したり、発光層との間でエキサイプレックスを形成して効率を低下させたりしないことが好ましい。

【0272】

40

このような正孔輸送層の材料としては、従来正孔輸送層の材料として用いられている材料であればよい。例えば、本発明の有機電界発光素子用組成物に含有される正孔輸送性化合物として例示したものが挙げられる。また、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニルで代表される2個以上の3級アミンを含み2個以上の縮合芳香族環が窒素原子に置換した芳香族ジアミン（特開平5-234681号公報）、4, 4', 4''-トリス（1-ナフチルフェニルアミノ）トリフェニルアミン等のスターバースト構造を有する芳香族アミン化合物（J. Lumin., 72-74巻、985頁、1997年）、トリフェニルアミンの四量体から成る芳香族アミン化合物（Chem. Commun., 2175頁、1996年）、2, 2', 7, 7'-テトラキス（ジフェニルアミノ）-9, 9'-スピロビフルオレン等のスピロ化合物（Synth. Metal

50

s, 91巻、209頁、1997年)、4, 4'-N, N'-ジカルバゾールビフェニルなどのカルバゾール誘導体などが挙げられる。また、例えばポリビニルカルバゾール、ポリビニルトリフェニルアミン(特開平7-53953号公報)、テトラフェニルベンジジンを含むポリアリーレンエーテルサルホン(Poly m. Adv. Tech., 7巻、33頁、1996年)等が挙げられる。

【0273】

湿式成膜法で正孔輸送層を形成する場合は、正孔輸送層形成用組成物を調製した後、成膜、加熱乾燥させる。正孔輸送層形成用組成物には、正孔輸送性化合物の他、有機溶媒を含む。有機溶媒は本発明の有機電界発光素子用組成物に用いたものと同様である。また、成膜条件、加熱乾燥条件等も正孔注入層形成時と同様である。

10

また、真空蒸着法により正孔輸送層を形成する場合の成膜条件等は下記の通りである。

【0274】

真空蒸着により正孔輸送層を形成する場合には、正孔輸送層の構成材料(前述の正孔輸送性化合物、電子受容性化合物等)の1種または2種以上を真空容器内に設置されたるつぼに入れ(2種以上の材料を用いる場合は各々のるつぼに入れ)、真空容器内を適当な真空ポンプで 10^{-4} Pa程度まで排気した後、るつぼを加熱して(2種以上の材料を用いる場合は各々のるつぼを加熱して)、蒸発量を制御して蒸発させ(2種以上の材料を用いる場合は各々独立に蒸発量を制御して蒸発させ)、るつぼと向き合って置かれた基板の陽極上に正孔輸送層を形成させる。なお、2種以上の材料を用いる場合は、それらの混合物をるつぼに入れ、加熱、蒸発させて正孔輸送層を形成することもできる。

20

【0275】

蒸着時の真空度は、本発明の効果を著しく損なわない限り限定されないが、通常 0.1×10^{-6} Torr (0.13×10^{-4} Pa)以上、通常 9.0×10^{-6} Torr (12.0×10^{-4} Pa)以下である。蒸着速度は、本発明の効果を著しく損なわない限り限定されないが、通常 $0.1 \text{ \AA}/\text{秒}$ 以上、通常 $5.0 \text{ \AA}/\text{秒}$ 以下である。蒸着時の成膜温度は、本発明の効果を著しく損なわない限り限定されないが、好ましくは 10°C 以上で、好ましくは 50°C 以下で行われる。

【0276】

正孔輸送層は、上記正孔輸送性化合物の他、各種の発光材料、電子輸送性化合物、バインダー樹脂、塗布性改良剤などを含有していてもよい。

30

正孔輸送層は架橋性化合物を架橋して形成される層であってもよい。架橋性化合物は、後述する架橋性基を有する化合物であって、架橋することにより網目状芳香族アミン系ポリマーを形成する。架橋性化合物は、モノマー、オリゴマー、ポリマーのいずれであってもよく、中でも芳香族アミン系ポリマーが好ましい。架橋性化合物は1種のみを有していてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で有していてもよい。

【0277】

また、架橋性基とは近傍に位置するほかの分子の同一又は異なる基と反応して、新規な化学結合を生成する基のことをいう。例えば、熱及び/又は活性エネルギー線の照射により、近傍に位置する他の分子の同一又は異なる基と反応して、新規な化学結合を生成する基が挙げられる。

40

架橋性基の例を挙げると、オキセタン基、エポキシ基などの環状エーテル；ビニル基、トリフルオロビニル基、スチリル基、アクリル基、メタクリロイル基、シンナモイル基等の不飽和二重結合；ベンゾシクロブタン基などが挙げられる。

【0278】

架橋性基を有するモノマー、オリゴマー又はポリマーが有する架橋性基の数に特に制限はないが、電荷輸送ユニットあたり通常2.0未満、好ましくは0.8以下、より好ましくは0.5以下となる数が好ましい。架橋性化合物の比誘電率を好適な範囲に納めるためである。また、架橋性基の数が多すぎると、反応活性種が発生し、他の材料に悪影響を与える可能性があるためである。ここで、電荷輸送ユニットとは、網目状芳香族アミン系ポリマーを形成する材料がモノマーの場合、モノマーそのものであり、架橋性基をのぞいた

50

骨格（主骨格）のことを示す。他種類のモノマーを混合する場合においても、各々のモノマーの主骨格のことを示す。網目状ポリマーを形成する材料が芳香族アミン系ポリマーの場合、有機化学的に共役がとぎれる構造の場合は、その繰り返しの構造を電荷輸送ユニットとする。また、広く共役が連なっている構造の場合には、電荷輸送性を示す最小繰り返し構造は、モノマーの構造をである。例えば、ナフタレン、トリフェニレン、フェナントレン、テトラセン、クリセン、ピレン、ペリレンなどの多環系芳香族、フルオレン、トリフェニレン、カルバゾール、トリアリールアミン、テトラアリールベンジジン、1, 4-ビス（ジアリールアミノ）ベンゼンなどが挙げられる。

【0279】

さらに、架橋性化合物としては、架橋性基を有する正孔輸送性化合物を用いることが好ましい。正孔輸送性化合物の例を挙げると、ピリジン誘導体、ピラジン誘導体、ピリミジン誘導体、トリアジン誘導体、キノリン誘導体、フェナントロリン誘導体、カルバゾール誘導体、フタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体等の含窒素芳香族化合物誘導体；トリフェニルアミン誘導体；シロール誘導体；オリゴチオフエン誘導体、縮合多環芳香族誘導体、金属錯体などが挙げられる。その中でも、ピリジン誘導体、ピラジン誘導体、ピリミジン誘導体、トリアジン誘導体、キノリン誘導体、フェナントロリン誘導体、カルバゾール誘導体等の含窒素芳香族誘導体；トリフェニルアミン誘導体、シロール誘導体、縮合多環芳香族誘導体、金属錯体などが好ましく、特に、トリフェニルアミン誘導体がより好ましい。架橋性化合物の分子量は、通常5000以下、好ましくは2500以下であり、また好ましくは300以上、さらに好ましくは500以上である。

【0280】

架橋性化合物を架橋して正孔輸送層を形成するには、通常、架橋性化合物を有機溶媒に溶解または分散した塗布液（正孔輸送層形成用組成物）を調製して、湿式成膜により成膜して架橋させる。

塗布液には、架橋性化合物の他、架橋反応を促進する添加物を含んでいてもよい。架橋反応を促進する添加物の例を挙げると、アルキルフェノン化合物、アシルホスフィンオキサイド化合物、メタロセン化合物、オキシムエステル化合物、アゾ化合物、オニウム塩等の架橋開始剤及び架橋促進剤；縮合多環炭化水素、ポルフィリン化合物、ジアリールケトン化合物等の光増感剤；などが挙げられる。また、さらに、レベリング剤、消泡剤等の塗布性改良剤；電子受容性化合物：バインダー樹脂、などを含有していてもよい。

【0281】

塗布液に用いられる有機溶媒は、正孔注入層を形成するために本発明の有機電界発光素子用組成物が用いられる場合は、前記特許文献1の正孔輸送層を形成するための組成物有機溶媒として例示したものと同様である。塗布液は、架橋性化合物を通常0.01重量%以上、好ましくは0.05重量%以上、さらに好ましくは0.1重量%以上、通常50重量%以下、好ましくは20重量%以下、さらに好ましくは10重量%以下含有する。正孔注入層を形成するために本発明の有機電界発光素子用組成物が用いられない場合は、正孔輸送層には本発明の溶媒が好適に用いられる。

【0282】

塗布液を下層上に成膜後、加熱及び／または活性エネルギー線照射により、架橋性化合物を架橋させて網目状高分子化する。成膜後の加熱の手法は特に限定されないが、例としては加熱乾燥、減圧乾燥等が挙げられる。加熱乾燥の場合の条件としては、通常120℃以上、好ましくは400℃以下に成膜された層を加熱する。加熱時間としては、通常1分以上、好ましくは24時間以下である。加熱手段としては特に限定されないが、成膜された層を有する積層体をホットプレート上に載せたり、オープン内で加熱するなどの手段が用いられる。例えば、ホットプレート上で120℃以上、1分間以上加熱する等の条件を用いることができる。

【0283】

活性エネルギー線照射による場合には、超高圧水銀ランプ、高圧水銀ランプ、ハロゲンランプ、赤外ランプ等の紫外・可視・赤外光源を直接用いて照射する方法、あるいは前述

の光源を内蔵するマスクアライナ、コンベア型光照射装置を用いて照射する方法などが挙げられる。光以外の活性エネルギー線照射では、例えばマグネトロンにより発生させたマイクロ波を照射する装置、いわゆる電子レンジを用いて照射する方法が挙げられる。照射時間としては、膜の溶解性を低下させるために必要な条件を設定することが好ましいが、通常、0.1秒以上、好ましくは10時間以下照射される。

【0284】

加熱及び活性エネルギー線照射は、各々単独、あるいは組み合わせて行ってもよい。組み合わせる場合、実施する順序は特に限定されない。

加熱及び活性エネルギー線照射は、実施後に層に含有する水分及び／または表面に吸着する水分の量を低減するために、窒素ガス雰囲気等の水分を含まない雰囲気で行うことが好ましい。同様の目的で、加熱及び／または活性エネルギー線照射を組み合わせて行う場合には、少なくとも発光層の形成直前の工程を窒素ガス雰囲気等の水分を含まない雰囲気で行うことが特に好ましい。

【0285】

正孔輸送層の膜厚は、通常5nm以上、好ましくは10nm以上であり、また通常300nm以下、好ましくは100nm以下である。

【0286】

{発光層}

正孔注入層の上、又は正孔輸送層を設けた場合には正孔輸送層の上には発光層が設けられる。発光層は、電界を与えられた電極間において、陽極から注入された正孔と、陰極から注入された電子との再結合により励起されて、主たる発光源となる層である。

【0287】

<発光層の材料>

発光層は、その構成材料として、少なくとも、発光の性質を有する材料（発光材料）を含有するとともに、好ましくは、正孔移動の性質を有する化合物（正孔輸送材料）、あるいは、電子移動の性質を有する化合物（電子輸送材料）を含有する。発光材料については特に限定はなく、所望の発光波長で発光し、発光効率が良好である物質を用いればよい。また、電荷輸送材料を2成分以上含有していることが好ましい。更に、発光層は、本発明の効果を著しく損なわない範囲で、その他の成分を含有していてもよい。なお、湿式成膜法で発光層を形成する場合は、何れもモノマー量の材料を使用することが好ましい。

【0288】

(発光材料)

発光材料としては、任意の公知の材料を適用可能である。例えば、蛍光発光材料であってもよく、燐光発光材料であってもよいが、内部量子効率の観点から、好ましくは燐光発光材料である。

なお、溶媒への溶解性を向上させる目的で、発光材料の分子の対称性や剛性を低下させたり、或いはアルキル基などの親油性置換基を導入したりすることが好ましい。

【0289】

以下、発光材料のうち蛍光色素の例を挙げるが、蛍光色素は以下の例示物に限定されるものではない。

青色発光を与える蛍光色素（青色蛍光色素）としては、例えば、ナフタレン、ペリレン、ピレン、アントラセン、クマリン、クリセン、p-ビス（2-フェニルエチル）ベンゼン及びそれらの誘導体等が挙げられる。

【0290】

緑色発光を与える蛍光色素（緑色蛍光色素）としては、例えば、キナクリドン誘導体、クマリン誘導体、Al(C₉H₆NO)₃などのアルミニウム錯体等が挙げられる。

黄色発光を与える蛍光色素（黄色蛍光色素）としては、例えば、ルブレン、ペリミドン誘導体等が挙げられる。

赤色発光を与える蛍光色素（赤色蛍光色素）としては、例えば、DCM(4-(diarylanomethylene)-2-methyl-6-(p-dimethylamino

10

20

30

40

50

nostyryl)-4H-pyran)系化合物、ベンゾピラン誘導体、ローダミン誘導体、ベンゾチオキサンテン誘導体、アザベンゾチオキサンテン等が挙げられる。

【0291】

燐光発光材料としては、例えば、長周期型周期表（以下、特に断り書きの無い限り「周期表」という場合には、長周期型周期表を指すものとする。）第7～11族から選ばれる金属を含む有機金属錯体が挙げられる。

周期表第7～11族から選ばれる金属として、好ましくは、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、金等が挙げられる。

【0292】

錯体の配位子としては、（ヘテロ）アリールピリジン配位子、（ヘテロ）アリールピラゾール配位子などの（ヘテロ）アリール基とピリジン、ピラゾール、フェナントロリンなどが連結した配位子が好ましく、特にフェニルピリジン配位子、フェニルピラゾール配位子が好ましい。ここで、（ヘテロ）アリールとは、アリール基またはヘテロアリール基を表す。

【0293】

燐光発光材料として、具体的には、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム、トリス（2-フェニルピリジン）ルテニウム、トリス（2-フェニルピリジン）パラジウム、ビス（2-フェニルピリジン）白金、トリス（2-フェニルピリジン）オスミウム、トリス（2-フェニルピリジン）レニウム、オクタエチル白金ポルフィリン、オクタフェニル白金ポルフィリン、オクタエチルパラジウムポルフィリン、オクタフェニルパラジウムポルフィリン等が挙げられる。

【0294】

発光材料として用いる化合物の分子量は、本発明の効果を著しく損なわない限り任意であるが、通常10000以下、好ましくは5000以下、より好ましくは4000以下、更に好ましくは3000以下、また、通常100以上、好ましくは200以上、より好ましくは300以上、更に好ましくは400以上の範囲である。発光材料の分子量が小さ過ぎると、耐熱性が著しく低下したり、ガス発生の原因となったり、膜を形成した際の膜質の低下を招いたり、或いはマイグレーションなどによる有機電界発光素子のモルフォロジー変化を来したりする場合がある。一方、発光材料の分子量が大き過ぎると、発光材料の精製が困難となってしまうたり、溶媒に溶解させる際に時間を要したりする傾向がある。

【0295】

なお、上述した発光材料は、いずれか1種のみを用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

発光層における発光材料の割合は、本発明の効果を著しく損なわない限り任意であるが、通常0.05重量%以上、好ましくは0.3重量%以上、より好ましくは0.5重量%以上、また、通常35重量%以下、好ましくは25重量%以下、更に好ましくは20重量%以下である。発光材料が少なすぎると発光ムラを生じる可能性があり、多すぎると発光効率が低下する可能性がある。なお、2種以上の発光材料を併用する場合には、これらの合計の含有量が上記範囲に含まれるようにする。

【0296】

（正孔輸送材料）

発光層には、その構成材料として、正孔輸送材料を含有させてもよい。ここで、正孔輸送材料のうち、モノマー量の正孔輸送材料の例としては、前述の正孔注入層における（モノマー量の正孔輸送材料）として例示した各種の化合物のほか、例えば、4,4'-ビス[N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ]ビフェニルに代表される、2個以上の3級アミンを含み2個以上の縮合芳香族環が窒素原子に置換した芳香族ジアミン（特開平5-234681号公報）、4,4',4"-トリス（1-ナフチルフェニルアミノ）トリフェニルアミン等のスターバースト構造を有する芳香族アミン化合物（Journal of Luminescence, 1997年, Vol. 72-74, pp. 985）、トリフェニルアミンの四量体から成る芳香族アミン化合物（Chemical Com

munications, 1996年, pp. 2175)、2, 2', 7, 7'-テトラキス-(ジフェニルアミノ)-9, 9'-スピロビフルオレン等のスピロ化合物 (Synthetic Metals, 1997年, Vol. 91, pp. 209) 等が挙げられる。

【0297】

なお、発光層において、正孔輸送材料は、1種のみを用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

発光層における正孔輸送材料の割合は、本発明の効果を著しく損なわない限り任意であるが、通常0.1重量%以上、好ましくは0.5重量%以上、より好ましくは1重量%以上、また、通常65重量%以下、好ましくは50重量%以下、更に好ましくは40重量%以下である。正孔輸送材料が少なすぎると短絡の影響を受けやすくなる可能性があり、多すぎると膜厚ムラを生じる可能性がある。なお、2種以上の正孔輸送材料を併用する場合には、これらの合計の含有量が上記範囲に含まれるようにする。

【0298】

(電子輸送材料)

発光層には、その構成材料として、電子輸送材料を含有させてもよい。ここで、電子輸送材料のうち、モノマー量の電子輸送材料の例としては、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-オキサジアゾール(BND)や、2, 5-ビス(6'-(2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロール(PyPySPyPy)や、バソフェナントロリン(BPhen)や、2, 9-ジメチル-4, 7-ジフェニル-1, 10-フェナントロリン(BCP、バソクプロイン)、2-(4-ビフェニル)-5-(p-ターシャルブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール(tBu-PBD)や、4, 4'-ビス(9-カルバゾール)-ビフェニル(CBP)等が挙げられる。なお、発光層において、電子輸送材料は、1種のみを用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

【0299】

発光層における電子輸送材料の割合は、本発明の効果を著しく損なわない限り任意であるが、通常0.1重量%以上、好ましくは0.5重量%以上、より好ましくは1重量%以上、また、通常65重量%以下、好ましくは50重量%以下、更に好ましくは40重量%以下である。電子輸送材料が少なすぎると短絡の影響を受けやすくなる可能性があり、多すぎると膜厚ムラを生じる可能性がある。なお、2種以上の電子輸送材料を併用する場合には、これらの合計の含有量が上記範囲に含まれるようにする。

【0300】

<発光層の形成>

本発明に係る湿式成膜法により発光層を形成する場合は、上述の材料を適切な有機溶媒に溶解させて湿式成膜用組成物を調製し、それを用いて成膜工程、好ましくは乾燥工程を介して形成する。これらの工程の詳細は、先に説明した内容と同様である。なお、他の有機層を本発明に係る湿式成膜法で形成する場合は、発光層の形成に蒸着法、又はその他の方法を用いてもよい。

【0301】

発光層用有機溶媒の好適な例は、前記特許文献1の発光層用有機溶媒と同一である。

発光層を形成するための湿式成膜用組成物に対する発光層用有機溶媒の比率は、本発明の効果を著しく損なわない限り任意であるが、通常0.01重量%以上、好ましくは0.1重量%以上、より好ましくは0.5重量%以上、また、通常70重量%以下、好ましくは60重量%以下、更に好ましくは50重量%以下の範囲である。なお、発光層用有機溶媒として2種以上の有機溶媒を混合して用いる場合には、これらの有機溶媒の合計がこの範囲を満たすようにする。

【0302】

発光層を形成するための湿式成膜用組成物の湿式成膜後、得られた塗膜を乾燥し、発光層用有機溶媒を除去することにより、発光層が形成される。湿式成膜法の方式は、本発明

の効果を著しく損なわない限り限定されず、前述のいかなる方式も用いることができる。

【0303】

発光層の膜厚は本発明の効果を著しく損なわない限り任意であるが、通常3 nm以上、好ましくは5 nm以上、また、通常200 nm以下、好ましくは100 nm以下の範囲である。発光層の膜厚が、薄すぎると膜に欠陥が生じる可能性があり、厚すぎると駆動電圧が上昇する可能性がある。

【0304】

{正孔阻止層}

発光層と後述の電子注入層との間に、正孔阻止層を設けてもよい。正孔阻止層は、発光層の上に、発光層の陰極側の界面に接するように積層される層である。

この正孔阻止層は、陽極から移動してくる正孔を陰極に到達するのを阻止する役割と、陰極から注入された電子を効率よく発光層の方向に輸送する役割とを有する。

【0305】

正孔阻止層を構成する材料に求められる物性としては、電子移動度が高く正孔移動度が低いこと、エネルギーギャップ(HOMO、LUMOの差)が大きいこと、励起三重項準位(T1)が高いことが挙げられる。このような条件を満たす正孔阻止層の材料としては、例えば、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(フェノラト)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(トリフェニルシラノラト)アルミニウム等の混合配位子錯体、ビス(2-メチル-8-キノラト)アルミニウム-μ-オキソビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム二核金属錯体等の金属錯体、ジスチリルビフェニル誘導体等のスチリル化合物(特開平11-242996号公報)、3-(4-ビフェニル)-4-フェニル-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール等のトリアゾール誘導体(特開平7-41759号公報)、バソクプロイン等のフェナントロリン誘導体(特開平10-79297号公報)などが挙げられる。更に、国際公開第2005-022962号パンフレットに記載の2,4,6位が置換されたピリジン環を少なくとも1個有する化合物も、正孔阻止層の材料として好ましい。

【0306】

なお、正孔阻止層の材料は、1種のみを用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

正孔阻止層の形成方法に制限はない。従って、湿式成膜法、蒸着法や、その他の方法で形成できる。

正孔阻止層の膜厚は、本発明の効果を著しく損なわない限り任意であるが、通常0.3 nm以上、好ましくは0.5 nm以上、また、通常100 nm以下、好ましくは50 nm以下である。

【0307】

{電子輸送層}

発光層と後述の陰極の間に、通常電子輸送層を設ける。

電子輸送層は、素子の発光効率を更に向上させることを目的として設けられるもので、電界を与えられた電極間において陰極から注入された電子を効率よく発光層の方向に輸送することができる化合物より形成される。

【0308】

電子輸送層に用いられる電子輸送性化合物としては、通常、陰極又は電子注入層からの電子注入効率が高く、かつ、高い電子移動度を有し注入された電子を効率よく輸送することができる化合物を用いる。このような条件を満たす化合物としては、例えば、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体などの金属錯体(特開昭59-194393号公報)、10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリンの金属錯体、オキサジアゾール誘導体、ジスチリルビフェニル誘導体、シロール誘導体、3-ヒドロキシフラボン金属錯体、5-ヒドロキシフラボン金属錯体、ベンゾオキサゾール金属錯体、ベンゾチアゾール金属錯体、トリスベンズイミダゾリルベンゼン(米国特許第5645948号明細書)、キノキサリン化合物(特開平6-207169号公報)、フェナントロリン誘導体(特開平5-3314

59号公報)、2-*t*-ブチル-9,10-N,N'-ジシアノアントラキノンジイミン、*n*型水素化非晶質炭化シリコン、*n*型硫化亜鉛、*n*型セレン化亜鉛などが挙げられる。

【0309】

なお、電子輸送層の材料は、1種のみを用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

電子輸送層の形成方法に制限はない。従って、湿式成膜法、蒸着法や、その他の方法で形成することができる。

電子輸送層の膜厚は、本発明の効果を著しく損なわない限り任意であるが、通常1nm以上、好ましくは5nm以上、また、通常300nm以下、好ましくは100nm以下の範囲である。

10

【0310】

発光層と電子輸送層は、1つの層としてもよい。その場合には、1つの層の中に、前述の発光材料と電子輸送材料を含有させる。発光材料、電子輸送材料としては、別々の化合物を使用することもできるが、発光機能と電子輸送機能を併せ持つ化合物（例えば、後述の式C3で表される8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体）を1種使用することもできる。

【0311】

{電子注入層}

電子輸送層と陰極の間に、電子注入層を設けることが好ましい。

電子注入層は、陰極から注入された電子を効率よく発光層へ注入する役割を果たす。電子注入を効率よく行なうには、電子注入層を形成する材料は、仕事関数の低い金属が好ましい。例としては、ナトリウムやセシウム等のアルカリ金属、バリウムやカルシウムなどのアルカリ土類金属等が用いられ、その膜厚は通常0.1nm以上、5nm以下が好ましい。

20

【0312】

更に、バソフェナントロリン等の含窒素複素環化合物や8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体などの金属錯体に代表される有機電子輸送化合物に、ナトリウム、カリウム、セシウム、リチウム、ルビジウム等のアルカリ金属をドーピングする（特開平10-270171号公報、特開2002-100478号公報、特開2002-100482号公報などに記載）ことにより、電子注入・輸送性が向上し優れた膜質を両立させることが可能となるため好ましい。この場合の膜厚は、通常、5nm以上、中でも10nm以上が好ましく、また、通常200nm以下、中でも100nm以下が好ましい。

30

【0313】

なお、電子注入層の材料は、1種のみを用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

電子注入層の形成方法に制限はない。従って、湿式成膜法、蒸着法や、その他の方法で形成することができる。

【0314】

{陰極}

陰極は、発光層側の層（電子注入層又は発光層など）に電子を注入する役割を果たすものである。

40

【0315】

陰極の材料としては、前記の陽極に使用される材料を用いることが可能であるが、効率よく電子注入を行なうには、仕事関数の低い金属が好ましく、例えば、スズ、マグネシウム、インジウム、カルシウム、アルミニウム、銀等の適当な金属又はそれらの合金が用いられる。具体例としては、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、アルミニウム-リチウム合金等の低仕事関数合金電極が挙げられる。

【0316】

なお、陰極の材料は、1種のみを用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

50

陰極の膜厚は、通常、陽極と同様である。

さらに、低仕事関数金属から成る陰極を保護する目的で、この上に更に、仕事関数が高く大気に対して安定な金属層を積層すると、素子の安定性が増すので好ましい。この目的のために、例えば、アルミニウム、銀、銅、ニッケル、クロム、金、白金等の金属が使われる。なお、これらの材料は、1種のみで用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

【0317】

{その他の層}

本発明に係る有機電界発光素子は、その趣旨を逸脱しない範囲において、別の構成を有していてもよい。例えば、その性能を損なわない限り、陽極と陰極との間に、上記説明にある層の他に任意の層を有していてもよく、また、任意の層が省略されていてもよい。

【0318】

<電子阻止層>

有していてもよい層としては、例えば、電子阻止層が挙げられる。

電子阻止層は、正孔注入層又は正孔輸送層と発光層との間に設けられ、発光層から移動してくる電子が正孔注入層に到達するのを阻止することで、発光層内で正孔と電子との再結合確率を増やし、生成した励起子を発光層内に閉じこめる役割と、正孔注入層から注入された正孔を効率よく発光層の方向に輸送する役割とがある。特に、発光材料として燐光材料を用いたり、青色発光材料を用いたりする場合は電子阻止層を設けることが効果的である。

【0319】

電子阻止層に求められる特性としては、正孔輸送性が高く、エネルギーギャップ（HOMO、LUMOの差）が大きいこと、励起三重項準位（T1）が高いこと等が挙げられる。更に、本発明においては、発光層を湿式成膜法で作製する場合には、電子阻止層にも湿式成膜の適合性が求められる。このような電子阻止層に用いられる材料としては、F8-TFBに代表されるジオクチルフルオレンとトリフェニルアミンの共重合体（国際公開第2004/084260号パンフレット）等が挙げられる。

【0320】

なお、電子阻止層の材料は、1種のみを用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

電子阻止層の形成方法に制限はない。従って、湿式成膜法、蒸着法や、その他の方法で形成することができる。

【0321】

さらに陰極と発光層又は電子輸送層との界面に、例えばフッ化リチウム（LiF）、フッ化マグネシウム（MgF₂）、酸化リチウム（Li₂O）、炭酸セシウム（Cs₂CO₃）等で形成された極薄絶縁膜（0.1～5nm）を挿入することも、素子の効率を向上させる有効な方法である（Applied Physics Letters, 1997年, Vol. 70, pp. 152; 特開平10-74586号公報; IEEE Transactions on Electron Devices, 1997年, Vol. 44, pp. 1245; SID 04 Digest, pp. 154等参照）。

【0322】

また、以上説明した層構成において、基板以外の構成要素を逆の順に積層することも可能である。例えば、図1の層構成であれば、基板上に他の構成要素を陰極、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に設けてもよい。

更には、少なくとも一方が透明性を有する2枚の基板の間に、基板以外の構成要素を積層することにより、本発明に係る有機電界発光素子を構成することも可能である。

【0323】

また、基板以外の構成要素（発光ユニット）を複数段重ねた構造（発光ユニットを複数積層させた構造）とすることも可能である。その場合には、各段間（発光ユニット間）の

界面層（陽極がITO、陰極がAlの場合は、それら2層）の代わりに、例えば五酸化バナジウム（ V_2O_5 ）等からなる電荷発生層（Carrier Generation Layer：CGL）を設けると、段間の障壁が少なくなり、発光効率・駆動電圧の観点からより好ましい。

【0324】

更には、本発明に係る有機電界発光素子は、単一の有機電界発光素子として構成してもよく、複数の有機電界発光素子がアレイ状に配置された構成に適用してもよく、陽極と陰極がX-Yマトリックス状に配置された構成に適用してもよい。

また、上述した各層には、本発明の効果を著しく損なわない限り、材料として説明した以外の成分が含まれていてもよい。

10

【0325】

[有機ELディスプレイ]

本発明の有機電界発光素子を用いて有機ELディスプレイを作製することができる。本発明の有機電界発光素子が適用される有機ELディスプレイの型式や構造については特に制限はなく、本発明の有機電界発光素子を用いて常法に従って組み立てることができる。

例えば、「有機ELディスプレイ」（オーム社、平成16年8月20日発行、時任静士、安達千波矢、村田英幸著）に記載されているような方法で、有機ELディスプレイを形成することができる。

【0326】

[有機EL照明]

本発明の有機電界発光素子を用いて有機EL照明を作製することができる。本発明の有機電界発光素子が適用される有機EL照明の型式や構造については特に制限はなく、本発明の有機電界発光素子を用いて常法に従って組み立てることができる。

20

【実施例】

【0327】

次に、本発明を実施例によって更に具体的に説明するが、本発明はその要旨を超えない限り、以下の実施例の記載に限定されるものではない。

なお、以下において「部」は「重量部」と表す。

【0328】

[有機電界発光素子用組成物の調製と評価]

30

[実施例1]

<有機電界発光素子用組成物1の調製>

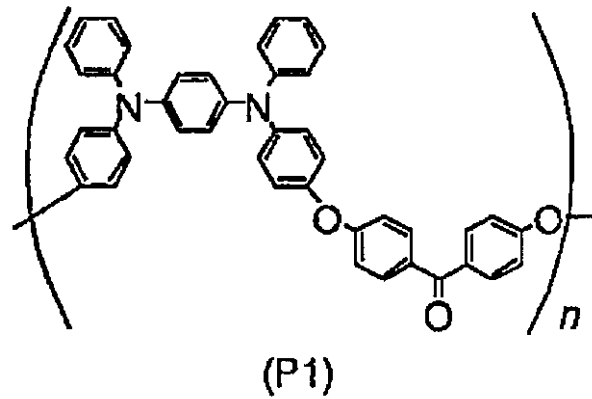
下記式で表される繰り返し単位からなる芳香族アミン系ポリマー（P1）（重量平均分子量：30000）、下記構造式で表される電子受容性化合物（A1）、及び有機溶媒を含有する有機電界発光素子用組成物1を下記の配合で調製した。

溶質成分	化合物（P1）	15部
	化合物（A1）	1.5部
有機溶媒	安息香酸n-ブチル	329部
	ジフェニルエーテル	155部

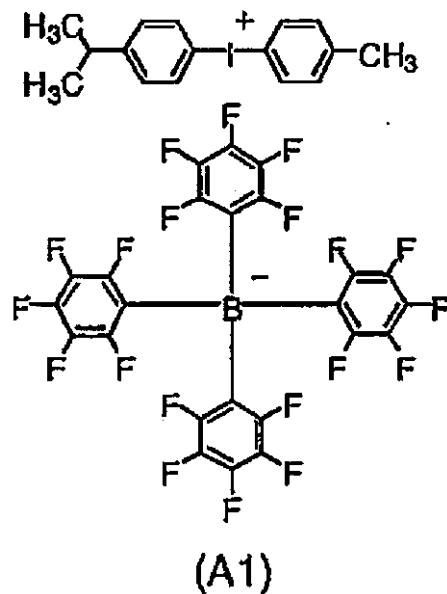
【0329】

40

【化 4 2】



10



20

30

【0330】

化合物（P1）と化合物（A1）と2種の有機溶媒を混合して、140℃で3時間、加熱攪拌を行った。放冷後、溶解残渣が沈殿していないことを目視確認した後、0.2 μm PTFEフィルターにて濾過処理を行った。

【0331】

得られた有機電界発光素子用組成物1について以下の評価方法で評価を行い、以下の評価結果を得た。

40

【0332】

<評価方法>

<評価1：組成物の均一性>

上記の組成物調製の最終濾過の前に、溶解残渣が沈殿したり浮遊したりしていないかどうかを目視確認し、系の均一さを以下の基準で評価した。

○：溶解残渣は無く、均一

×：溶解残渣があり、不均一

【0333】

<評価2：耐乾燥性>

評価1で均一であることが確認した後、最終的に得られた組成物について、スライドガ

50

ラスの上に1滴液滴をスポットし、25℃の大気中で5時間静置した後、組成物液滴に流動性があるかを否か観察し、以下の基準で評価した。

○：被膜形成や結晶析出は見られず、スライドガラスを傾けると、スポットが流動する。

×：被膜形成又は溶質の析出により、流動性の無いスポットが形成されている。

【0334】

<評価結果>

評価1：組成物中に溶解しきれない溶質成分は見られず、均一な組成物が得られた。

評価2：スライドガラス上に液滴をスポットした後、6時間後にも、被膜形成や結晶析出が見られず、スポットには流動性があった。

10

【0335】

[実施例2]

<有機電界発光素子用組成物2の調製>

有機溶媒の種類と割合を下記に変更した他は、実施例1と同様に有機電界発光素子用組成物2を調製し、同様に評価を行って、以下の評価結果を得た。

溶質成分	化合物(P1)	15部
	化合物(A1)	1.5部
有機溶媒	安息香酸n-ブチル	300部
	ジフェニルエーテル	184部

【0336】

<評価結果>

評価1：組成物中に溶解しきれない溶質成分は見られず、均一な組成物が得られた。

評価2：スライドガラス上に液滴をスポットした後、6時間後にも、被膜形成や結晶析出が見られず、スポットには流動性があった。

20

【0337】

[実施例3]

<有機電界発光素子用組成物3の調製>

有機溶媒の種類と割合を下記に変更した他は、実施例1と同様に有機電界発光素子用組成物3を調製し、同様に評価を行って、以下の評価結果を得た。

溶質成分	化合物(P1)	15部
	化合物(A1)	1.5部
有機溶媒	安息香酸n-ブチル	300部
	ジフェニルメタン	184部

【0338】

<評価結果>

評価1：組成物中に溶解しきれない溶質成分は見られず、均一な組成物が得られた。

評価2：スライドガラス上に液滴をスポットした後、6時間後にも、被膜形成や結晶析出が見られず、スポットには流動性があった。

【0339】

[比較例1]

<有機電界発光素子用組成物4の調製>

有機溶媒の種類と割合を下記に変更した他は、実施例1と同様に有機電界発光素子用組成物4を調製し、同様に評価を行って、以下の評価結果を得た。

溶質成分	化合物(P1)	15部
	化合物(A1)	1.5部
有機溶媒	安息香酸n-ブチル	329部
	ジフェニルメタン	155部

【0340】

<評価結果>

評価1：溶解しきれない溶質成分が沈殿し、均一な組成物が得られなかった。

50

評価 2：均一な組成物が得られなかったため、耐乾燥性は評価できなかった。

【0341】

[比較例 2]

＜有機電界発光素子用組成物 5 の調製＞

有機溶媒の種類と割合を下記に変更した他は、実施例 1 と同様に有機電界発光素子用組成物 5 を調製し、同様に評価を行って、以下の評価結果を得た。

溶質成分	化合物 (P 1)	1 5 部
	化合物 (A 1)	1 . 5 部
有機溶媒	安息香酸 n-ブチル	4 8 4 部

【0342】

＜評価結果＞

評価 1：溶解しきれない溶質成分が沈殿し、均一な組成物が得られなかった。

評価 2：均一な組成物が得られなかったため、耐乾燥性は評価できなかった。

【0343】

[比較例 3]

＜有機電界発光素子用組成物 6 の調製＞

有機溶媒の種類と割合を下記に変更した他は、実施例 1 と同様に有機電界発光素子用組成物 6 を調製し、同様に評価を行って、以下の評価結果を得た。

溶質成分	化合物 (P 1)	1 5 部
	化合物 (A 1)	1 . 5 部
有機溶媒	安息香酸エチル	4 8 4 部

【0344】

＜評価結果＞

評価 1：組成物中に溶解しきれない溶質成分は見られず、均一な組成物が得られた。

評価 2：流動性の無い被膜状のスポットが形成されていた。

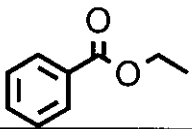
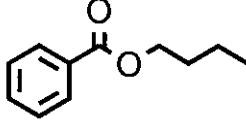
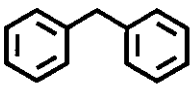
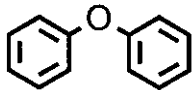
【0345】

[A r C / A l C 比の算出]

上記の実施例 1～3 及び比較例 1～3 で用いた有機溶媒の分子量、芳香族炭素及び脂肪族炭素の数と沸点は以下の通りである。

【0346】

【表 1 4】

化合物名	構造式	分子量	芳香族炭素数	脂肪族炭素数	沸点 (°C)
安息香酸エチル		150.17	6	2	213.2
安息香酸n-ブチル		178.23	6	4	250.3
ジフェニルメタン		168.23	12	1	264.5
ジフェニルエーテル		170.21	12	0	259

10

20

30

40

50

【0347】

実施例1～3及び比較例1のうち、実施例1におけるArC/AIC比は、以下の通り算出される。

<実施例1>

溶媒(a)：安息香酸n-ブチル 329部

溶媒(b)：ジフェニルエーテル 155部

溶媒(a)：溶媒(b)＝(重量比)68：32

溶媒(a)：溶媒(b)＝(モル比)0.0038：0.0019

溶媒(a)の1分子中には、芳香族炭素は6個、脂肪族炭素は4個あるので、0.0038モル中の芳香族炭素は0.0038モル×6個、脂肪族炭素は0.0038モル×4個。

溶媒(b)の1分子中には、芳香族炭素は12個、脂肪族炭素は0個あるので、0.0019モル中の芳香族炭素は0.0019モル×12個、脂肪族炭素は0.0019モル×0個。

「溶媒(a)＋溶媒(b)」中の芳香族炭素(ArC)／脂肪族炭素(AIC)は、
(0.0038モル×6個＋0.0019モル×12個)／

(脂肪族炭素は0.0038モル×4個＋0.0019モル×0個)＝3

となる。

同様にして各実施例及び比較例におけるArC/AIC比を算出し、沸点及び有機電界発光素子用組成物の評価結果と共に、下記表にまとめる。

【0348】

【表15】

	有機電界発光素子用組成物 番号	ArC/AIC 比	沸点(°C)		評価1 (均一性)	評価2 (耐乾燥性)
			溶媒(a)	溶媒(b)		
実施例1	1	3.0	250.3	259	○	○
実施例2	2	3.4	250.3	259	○	○
実施例3	3	3.0	250.3	264.5	○	○
比較例1	4	2.7	250.3	264.5	×	評価不能
比較例2	5	1.5	250.3	—	×	評価不能
比較例3	6	3.0	213.2	—	○	×

【0349】

〔有機電界発光素子の作成〕

〔実施例4〕

<正孔注入層の形成>

洗浄処理したITO基板上に、上記有機電界発光素子用組成物1を用いて、スピンコート法にて正孔注入層を形成した。スピンコートは気温23℃、相対湿度50%の大気中で行ない、スピナ回転数は2750rpm、スピナ時間は30秒とした。塗布後、ホットプレート上で80℃で1分間加熱乾燥した後、オープン大気中で230℃にて15分間ベークし、膜厚35nmの正孔注入層を形成した。

【0350】

<正孔輸送層の形成>

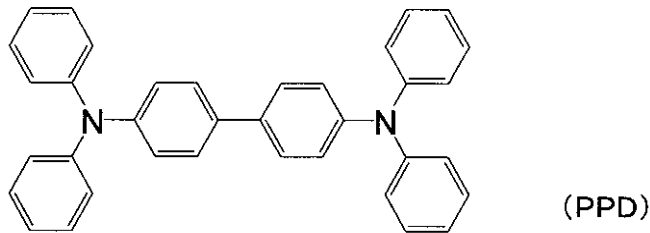
この基板を真空蒸着装置のチャンバー内に設置した。チャンバーはロータリーポンプで粗引きした後、クライオポンプにて減圧した。真空度は 0.8×10^{-6} Torrであった。基板には、所定の領域に、蒸着用マスクを配置し、チャンバーには予め必要な蒸着材料をそれぞれ別の磁器製坩堝に入れて配置しておいた。

【0351】

下記式で表される 4, 4'-ビス (N, N'-ジフェニルアミノ) ビフェニル (PPD) を入れた磁器製坩堝を通電加熱し、正孔注入層上に蒸着した。蒸着時の真空度は 0.8×10^{-6} Torr、蒸着速度は $0.9 \sim 1.1 \text{ \AA/s}$ とし、正孔輸送層を膜厚 45 nm で形成した。

【0352】

【化43】



10

【0353】

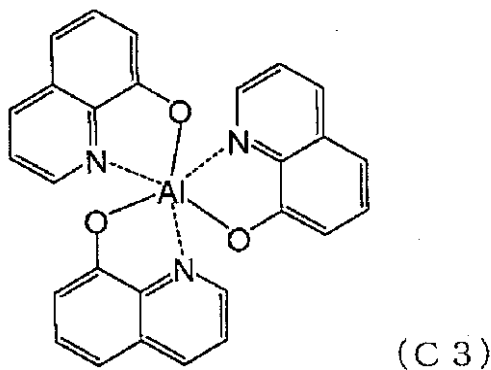
<発光・電子輸送層の形成>

次に、下記式 C3 で表される 8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体 (Alq3) を入れた磁器製坩堝を通電加熱し、正孔輸送層の上に蒸着した。蒸着時の真空度は $0.7 \times 10^{-6} \sim 0.8 \times 10^{-6}$ Torr、蒸着速度は $1.1 \sim 1.4 \text{ \AA/s}$ とし、発光層を兼ねた電子輸送層を膜厚 60 nm で形成した。

20

【0354】

【化44】



30

【0355】

<陰極形成>

次に、基板を一旦大気中に取り出し、陰極蒸着用のマスクとして 2 mm 幅のストライプ状シャドーマスクを、陽極の ITO ストライプと直交するように配置し、速やかに蒸着装置に設置した。チャンバーはロータリーポンプで粗引きした後、クライオポンプにて減圧した。真空度は 1.5×10^{-4} Pa であった。陰極として、まず、フッ化リチウム (LiF) を入れたモリブデン製ボートを通電加熱し、電子輸送層の上に蒸着した。蒸着条件は、蒸着時の真空度は $1.7 \times 10^{-4} \sim 1.9 \times 10^{-4}$ Pa、蒸着速度は $0.12 \sim 0.13 \text{ \AA/s}$ とし、膜厚 0.5 nm で成膜した。最後に、アルミニウムを入れたモリブデン製ボートを通電加熱して蒸着した。蒸着条件は、蒸着時の真空度は $2.2 \times 10^{-4} \sim 2.5 \times 10^{-4}$ Pa、蒸着速度は $1.2 \sim 5.5 \text{ \AA/s}$ とし、膜厚 80 nm で成膜した。

40

【0356】

<封止>

50

次に、基板を一旦大気中に取り出し、速やかに窒素置換されたグローブボックスに移した。窒素置換されたグローブボックス中では封止ガラス板の凹部に吸湿剤シートを貼り付け、封止ガラス板の凹部の周囲にUV硬化樹脂塗をディスペンサーにて塗布し、蒸着を行った基板の蒸着領域を封止ガラス板で密封するように密着させ、UVランプにてUV光を照射してUV硬化樹脂を硬化させた。

【0357】

以上の様にして、有機電界発光素子を得た。

【0358】

<素子評価確認>

この素子に通電したところ、発光欠陥の無い均一な発光面の緑色発光が得られた。

10

【産業上の利用可能性】

【0359】

本発明の有機電界発光素子用組成物は、保存安定性が高く、湿式成膜法で有機層を形成する場合において、均一に成膜可能であり、また工業的観点から不利益を生じさせない。

また、本発明の有機電界発光素子用組成物を用いて、湿式成膜法により形成された有機層を有する有機電界発光素子は、短絡やダークスポットを生じさせず、また駆動寿命が長い。

これより、本発明は、有機電界発光素子が使用される各種の分野、例えば、フラットパネル・ディスプレイ（例えばOAコンピュータ用や壁掛けテレビ）や面発光体としての特徴を生かした光源（例えば、複写機の光源、液晶ディスプレイや計器類のバックライト光源）、表示板、標識灯等の分野において、好適に使用することが出来る。

20

【符号の説明】

【0360】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 正孔阻止層
- 7 電子輸送層
- 8 電子注入層
- 9 陰極

30

【図 1】

