

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2007年11月22日 (22.11.2007)

PCT

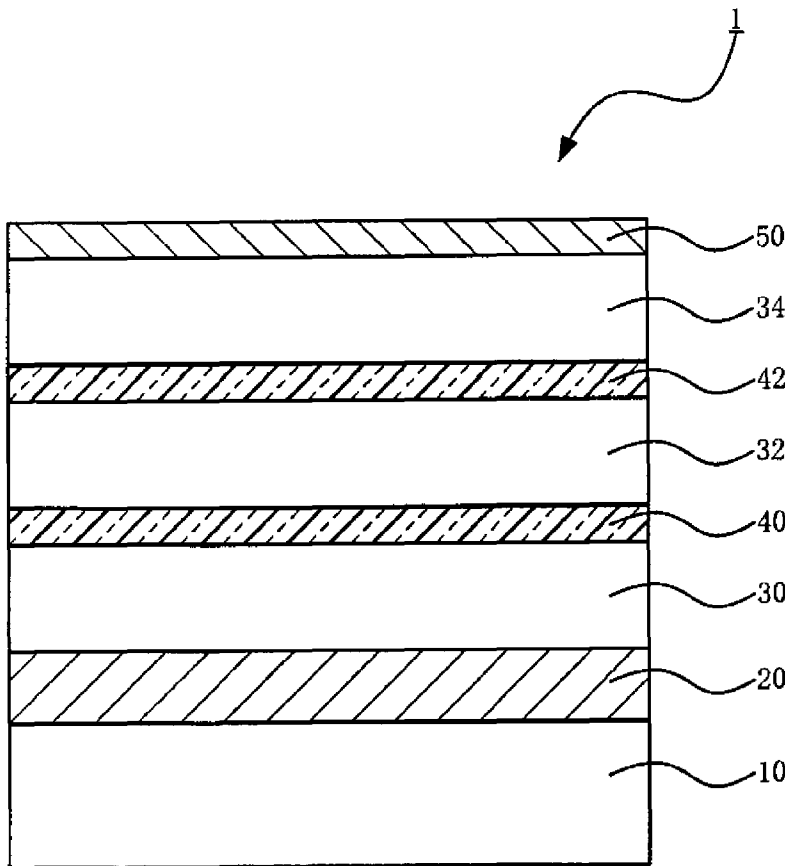
(10) 国際公開番号
WO 2007/132678 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/12 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2007/059364
- (22) 国際出願日: 2007年5月2日 (02.05.2007)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2006-133033 2006年5月11日 (11.05.2006) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO.,LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 熊均 (KUMA, Hitoshi) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 山本弘志 (YAMAMOTO, Hiroshi) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 細川地潮 (HOSOKAWA, Chishio) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 渡辺喜平 (WATANABE, Kihei); 〒1010041 東京都千代田区神田須田町一丁目26番芝信神田ビル3階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子



(57) Abstract: Disclosed is an organic EL device (1) wherein at least two organic light-emitting layers (30, 32, 34) are interposed between an anode (20) and a cathode (50), and at least one intermediate connection layer (40, 42) is arranged between the organic light-emitting layers (30, 32, 34). In this organic EL device (1), the intermediate connection layer (40, 42) is composed of an acceptor layer, a donor layer and an electron-transporting material layer sequentially arranged in this order. The electron-transporting material layer contains a non-complexed compound having a nitrogen-containing heterocyclic structure.

(57) 要約: 陽極 (20) と陰極 (50) の間に少なくとも2つの有機発光層 (30), (32), (34) が介在しており、有機発光層 (30), (32), (34) 間に、少なくとも1つの中間接続層 (40), (42) を備え、中間接続層 (40), (42) が、陰極 (50) 側から、アクセプター層、

ドナー層及び非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物を含む電子輸送材料層をこの順に積層してなる有機EL素子 (1)。

WO 2007/132678 A1



HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子に関する。

背景技術

[0002] 電界発光を利用したEL素子は、自己発光のため視認性が高く、かつ完全固体素子であるため、耐衝撃性に優れる等の長を有することから、各種表示装置における発光素子としての利用が注目されている。

このEL素子には、発光材料に無機化合物を用いてなる無機EL素子と、有機化合物を用いてなる有機EL素子とがあり、このうち、特に有機EL素子は、印加電圧を大幅に低くし得る上に、フルカラー化が容易であって、消費電力が小さく、面発光が可能であることから、次世代の発光素子として開発がなされている。

この有機EL素子の構成については、陽極／有機発光層／陰極の構成を基本とし、高効率で長寿命の有機EL素子を目指して、様々な素子構成が検討されている。

[0003] このような長寿命化、高効率化技術の一つとして、陰極／有機発光層／陽極のユニットを複数積層する技術がある(例えば特許文献1～3等)。単層素子に比べ、同一の輝度を得るのに電流密度が低くて済むため、素子の長寿命化が図れるという長所がある。しかしながら、これらの技術においては、複数の素子を直列に積層するために、駆動電圧が著しく高くなるという問題点があった。

特許文献1:特開平6-176870号公報

特許文献2:特開平11-312584号公報

特許文献3:特開平11-312585号公報

[0004] 本発明は上述の問題に鑑みなされたものであり、複数の発光層を直列に積層しても高効率で低電圧な有機EL素子を提供することを目的とする。

発明の開示

[0005] 本発明によれば、以下の有機EL素子が提供される。

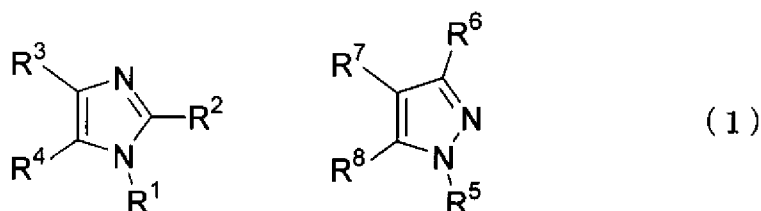
1. 陽極と陰極の間に少なくとも2つの有機発光層が介在しており、前記有機発光層

間に、少なくとも1つの中間接続層を備え、前記中間接続層が、陰極側から、アクセプター層、ドナー層及び非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物を含む電子輸送材料層をこの順に積層してなる有機エレクトロルミネッセンス素子。

2. 前記含窒素複素環構造が、含窒素5員複素環構造である1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

3. 前記電子輸送性材料層の非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物が、下記式(1)で表される化合物である1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

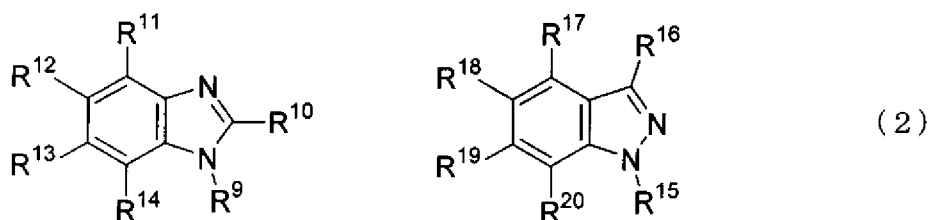
[化1]



(式中、 $R^1 \sim R^8$ はそれぞれ、水素原子、置換もしくは無置換の核原子数5~60のアリーール基、置換もしくは無置換の核原子数5~60のヘテロアリーール基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3~50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数6~50のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基又はカルボキシル基であり、 $R^1 \sim R^8$ の隣り合う置換基の一組が互いに結合して芳香環又は複素環を形成していてもよい。)

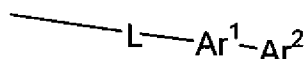
4. 前記電子輸送性材料層の非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物が、下記式(2)で表される化合物である1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化2]



(式中、 $R^9 \sim R^{20}$ はそれぞれ、水素原子、置換もしくは無置換の核原子数5～60のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数5～60のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基又はカルボキシル基であり、 $R^9 \sim R^{20}$ の隣り合う基が互いに結合して芳香環を形成していてもよく、 $R^9 \sim R^{20}$ の少なくとも1つは下記式で示される置換基である。

[化3]



(Lは、置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数5～60のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基であり、

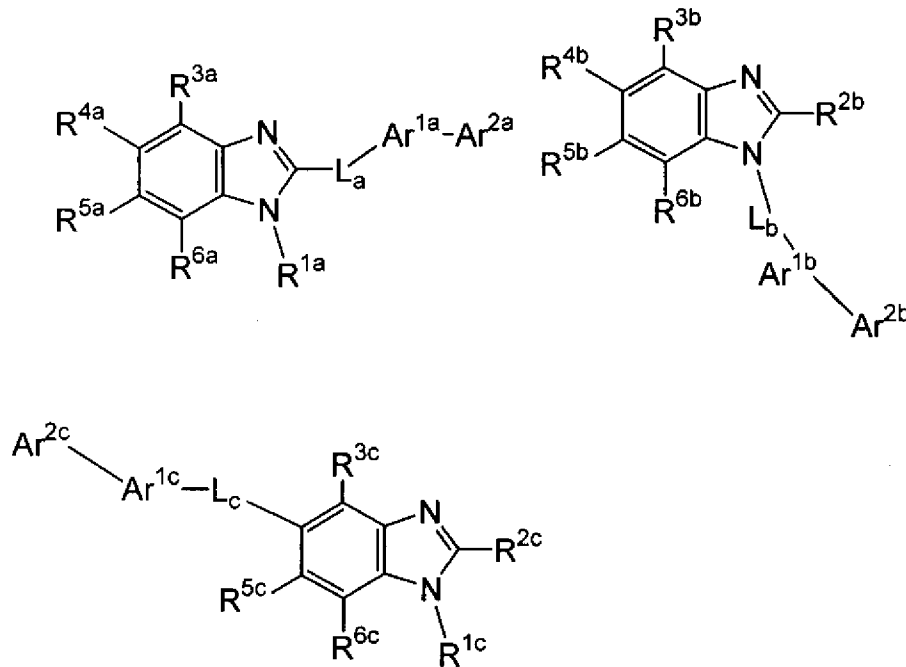
Ar^1 は、置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリーレン基、置換もしくは無置換のピリジニレン基又は置換もしくは無置換のキノリニレン基であり、

Ar^2 は、水素原子、置換もしくは無置換の核原子数5～60のアリール基、置換もしくは無置換のピリジル基、置換もしくは無置換のキノリル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1

～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基又はカルボキシル基である。))

5. 前記電子輸送性材料層の非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物が、下記式で表される化合物である4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化4]



(式中、 $R^{1a} \sim R^{6c}$ 、 $L_a \sim L_c$ 、 $Ar^{1a} \sim Ar^{2c}$ は、上記式(2)における $R^9 \sim R^{20}$ 、 L 、 Ar^1 、 Ar^2 とそれぞれ同じである。

6. 前記ドナー層のドナーが、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体及び希土類金属の有機錯体である1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

7. 前記アクセプター層のアクセプターが、電子吸引性の置換基又は電子欠乏環を有する有機化合物である1～6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

子。

8. 前記アクセプター層のアクセプターが、キノイド誘導体、アリアルボラン誘導体、チオピランジオキソイド誘導体、ナフタルイミド誘導体又はヘキサアザトリフェニレン誘導体である7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0006] 本発明によれば、高効率で低電圧な複数の発光層を積層した有機EL素子を提供できる。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]本発明に係る有機EL素子の第一の実施形態を示す図である。

[図2]図1に示す有機EL素子の中間接続層を示す図である。

発明を実施するための最良の形態

[0008] 本発明の有機EL素子は、陽極と陰極の間に少なくとも2つの有機発光層が介在しており、有機発光層間に、少なくとも1つの中間接続層を備えている。

中間接続層は、陰極側から、アクセプター層、ドナー層及び非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物を含む電子輸送材料層をこの順に積層してなる。

[0009] 図1は、本発明の有機EL素子の一実施形態を示す図である。この有機EL素子は、有機発光層を3層積層した例である。

この有機EL素子1は、支持基板10上に、透明陽極20が設けられ、この透明陽極20に、陰極50が対向して設けられている。透明陽極20と陰極50の間には、第一の有機発光層30、第二の有機発光層32、第三の有機発光層34と、第一の中間接続層40、第二の中間接続層42が設けられている。ここで、第一の中間接続層40が第一の有機発光層30と第二の有機発光層32の間に、第二の中間接続層42が第二の有機発光層32と第三の有機発光層34の間に介在する。有機発光層30、32、34が発する光は、透明陽極20を通して支持基板10から取り出す。

[0010] 図2は、本発明の中間接続層40、42を示す図である。図2に示すように、中間接続層40、42は、陰極50側から、アクセプター層60、ドナー層70及び非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物を含む電子輸送材料層80をこの順に積層した構成をしている。

[0011] 本発明において、アクセプター層60とは、隣接する有機発光層から電子を引き抜き

(電子をアクセプトする)、ドナー層へ移送する層である。また、ドナー層70とは、アクセプター層から電子を受け取り電子を電子輸送材料層に注入する(電子をドナーする)層である。電子輸送材料層80は、隣接する有機発光層に電子を注入する層である。

- [0012] この素子1の第一の有機発光層30においては、陽極20から正孔が注入され、第一の中間接続層40の電子輸送材料層から電子が注入されることにより発光する。第一の中間接続層40の電子輸送材料層には、アクセプター層からドナー層を通して電子が移送される。
- [0013] 第二の有機発光層32においては、第一の中間接続層40のアクセプター層から正孔が注入され、第二の中間接続層42の電子輸送材料層から電子が注入されることにより発光する。第一の中間接続層40の電子輸送材料層80には、アクセプター層からドナー層を通して電子が移送される。第二の中間接続層42の電子輸送材料層には、アクセプター層からドナー層を通して電子が移送される。
- [0014] 第三の有機発光層34においては、陰極50から電子が注入され、第二の中間接続層42のアクセプター層から正孔が注入されることにより発光する。第二の中間接続層42の電子輸送材料層80には、アクセプター層からドナー層を通して電子が移送される。
- [0015] 本発明は、中間接続層に特定の電子輸送材料層を用いることによって、低電圧化することができる。このため、有機発光層を積層した有機EL素子は高電圧化しやすいが、このような積層型の有機EL素子であっても、低電圧化、高効率化が図られる。
- [0016] 尚、本実施形態において、3層の有機発光層30, 32, 34、2層の中間接続層40, 42は、それぞれ異なっているが、同一でもよい。
- [0017] この実施形態では、有機発光層は3層積層されているが、2層又は4層以上積層してもよい。さらに、この実施形態では、中間接続層が各有機発光層の間にあるが、少なくとも二つの有機発光層の間に図2に示す積層構造の中間接続層が一つあればよい。従って、その他の有機発光層がある場合は、異なる有機発光層が直接接していてもよいし、図2に示す積層構造ではない通常の間接続層が介在してもよい。
- [0018] また、この実施形態では、透明電極は陽極であるが、陰極でも構わない。さらに、本

発明の有機EL素子はトップエミッションタイプでもボトムエミッションタイプでもよい。いずれのタイプでも、光を取り出す側の電極が光透過性となる。

[0019] 以下、本発明の有機EL素子の各構成部材について説明する。

1. 支持基板

支持基板は、有機EL素子を支持するための部材であり、そのため機械的強度や、寸法安定性に優れていることが好ましい。このような基板としては、具体的には、ガラス板、金属板、セラミックス板、又はプラスチック板(ポリカーボネート樹脂、アクリル樹脂、塩化ビニル樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリイミド樹脂、ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、シリコン樹脂、フッ素樹脂等)等を挙げることができる。

[0020] これらの材料からなる基板は、有機EL表示装置内への水分の侵入を避けるために、さらにも無機膜を形成したり、フッ素樹脂を塗布したりして、防湿処理や疎水性処理を施してあることが好ましい。特に、有機発光媒体への水分の侵入を避けるために、基板における含水率及びガス透過係数を小さくすることが好ましい。具体的に、支持基板の含水率を0.0001重量%以下及びガス透過係数を $1 \times 10^{-13} \text{ cc} \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{Se c. cmHg}$ 以下とすることがそれぞれ好ましい。

支持基板側から光を取り出す場合は、支持基板は可視光に対する透過率が50%以上の透明であることが望ましいが、その反対側からEL発光を取り出す場合には、基板は必ずしも透明性を有する必要はない。

[0021] 2. 陽極

陽極は、仕事関数の大きい(例えば、4.0eV以上)金属、合金、電気電導性化合物又はこれらの混合物を使用することが好ましい。具体的には、酸化インジウム錫合金(ITO)、インジウム-亜鉛酸化物(IZO)インジウム銅、スズ、酸化亜鉛、金、白金、パラジウム等の1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ使用することができる。

[0022] 陽極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。また、陽極の厚さは、特に制限されるものではないが、好ましくは10~1000nmであり、より好ましくは10~200nmである。さらに、陽極から有機発光媒体層から放射された光を外部に取り出す場合は、好ましくは実質的

に透明、即ち、光透過率が50%以上である。

[0023] 3. 陰極

陰極は、好ましくは仕事関数の小さい(例えば、4.0eV未満)金属、合金、電気電導性化合物又はこれらの混合物を使用する。具体的には、マグネシウム、アルミニウム、インジウム、リチウム、ナトリウム、セシウム、銀等の1種を単独で、又は2種以上を組み合わせて使用することができる。また陰極の厚さは、特に制限されるものではないが、好ましくは10~1000nmであり、より好ましくは10~200nmである。

[0024] 4. 有機発光層

有機発光層は、電子と正孔とが再結合して、EL発光が可能な有機発光媒体層を含む。かかる有機発光層は、例えば、以下の各層を積層して構成することができる。

- (i) 有機発光媒体層
- (ii) 正孔注入層／有機発光媒体層
- (iii) 有機発光媒体層／電子注入層
- (iv) 正孔注入層／有機発光媒体層／電子注入・輸送層
- (v) 正孔注入層／有機発光媒体層／付着改善層

これらの中で、(iv)の構成が、より高い発光輝度が得られ、耐久性にも優れていることから、通常、好ましく用いられる。

[0025] 有機EL素子の発光媒体層は以下(1)~(3)の機能を併せ持つものである。

- (1) 注入機能;電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能
- (2) 輸送機能;注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能
- (3) 発光機能;電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能

ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

[0026] この発光媒体層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光媒体層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された

薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピコート法等により薄膜化することによっても、発光媒体層を形成することができる。

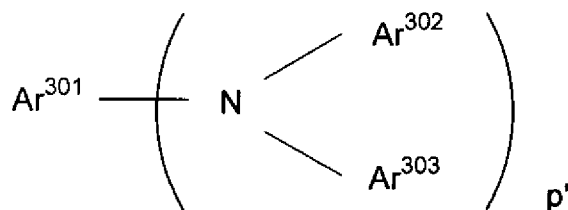
[0027] [有機発光媒体層]

有機発光媒体層に使用できる発光材料又はドーピング材料としては、例えば、アリーールアミン化合物及び／又はスチリルアミン化合物、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、キナクリドン、ルブレン及び蛍光色素等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0028] また、本発明の有機EL素子は、有機発光媒体層が、アリーールアミン化合物及び／又はスチリルアミン化合物を含有すると好ましい。

アリーールアミン化合物としては下記式(A)で表される化合物等が挙げられ、スチリルアミン化合物としては下記式(B)で表される化合物等が挙げられる。

[0029] [化5]

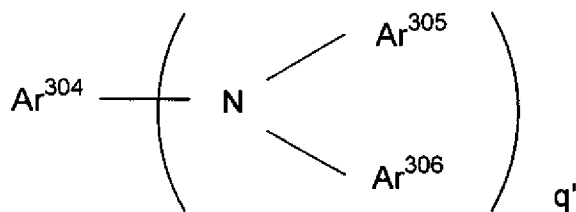


(A)

(式中、 Ar^{301} は、フェニル、ビフェニル、テルフェニル、スチルベン又はジスチリルアールであり、 Ar^{302} 及び Ar^{303} は、それぞれ水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数が6～20の芳香族基である。 p' は、1～4の整数である。さらに好ましくは Ar^{302} 及び/又は Ar^{303} はスチリル基が置換されている。)

ここで、炭素数が6～20の芳香族基としては、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナントリル基、テルフェニル基等が好ましい。

[0030] [化6]



(B)

(式中、 $\text{Ar}^{304} \sim \text{Ar}^{306}$ は、置換もしくは無置換の核炭素数5～40のアリール基である。 q' は、1～4の整数である。)

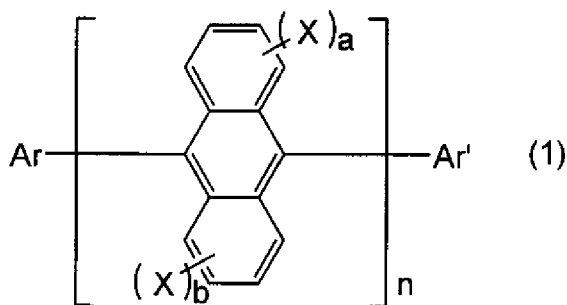
[0031] ここで、核原子数が5～40のアリール基としては、フェニル、ナフチル、アントラセニル、フェナントリル、ピレニル、クリセニル、コロニル、ビフェニル、テルフェニル、ピローリル、フラニル、チオフェニル、ベンゾチオフェニル、オキサジアゾリル、ジフェニルアントラセニル、インドリル、カルバゾリル、ピリジル、ベンゾキノリル、フルオランテニル、アセナフトフルオランテニル、スチルベン等が好ましい。核原子数が5～40のアリール基は、さらに置換基により置換されていてもよく、好ましい置換基としては、炭素数1～6のアルキル基(エチル基、メチル基、イソプロピル基、*n*-プロピル基、*s*-ブチ

ル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、炭素数1~6のアルコキシ基(エトキシ基、メトキシ基、イソプロポキシ基、n-プロポキシ基、s-ブトキシ基、t-ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロペントキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、核原子数5~40のアリール基、核原子数5~40のアリール基で置換されたアミノ基、核原子数5~40のアリール基を有するエステル基、炭素数1~6のアルキル基を有するエステル基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子(塩素、臭素、ヨウ素等)が挙げられる。

[0032] 発光媒体層に使用できるホスト材料としては、下記(1)~(10)で表される化合物が好ましい。

下記式(1)で表されるアントラセン誘導体。

[化7]



(式中、Ar、Ar'はそれぞれ置換もしくは無置換の核原子数5~60のアリール基又は置換もしくは無置換の核原子数5~60のヘテロアリール基である。

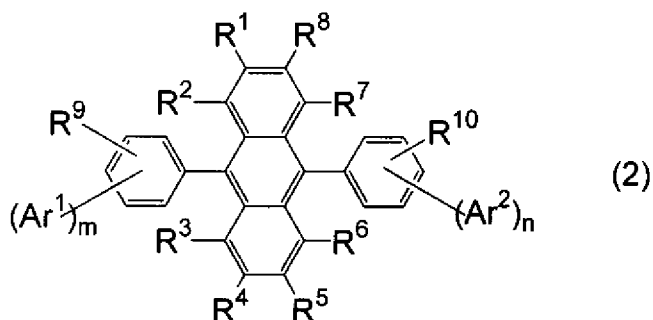
Xは、それぞれ置換もしくは無置換の核炭素数6~50のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6~50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシカルボニル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基又はヒドロキシル基である。

a及びbは、それぞれ0~4の整数である。

nは1~3の整数である。)

[0033] 下記式(2)で表されるアントラセン誘導体。

[化8]



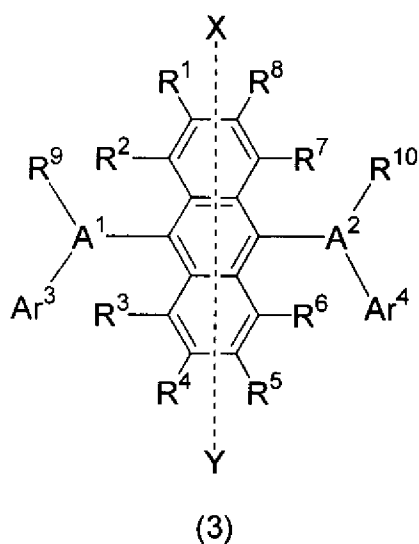
(式中、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ置換もしくは無置換の核炭素数6～50のアリール基、又は置換もしくは無置換の核原子数5～60のヘテロアリール基である。

m 及び n は、それぞれ1～4の整数である。

$R^1 \sim R^{10}$ は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換のシリル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基又はヒドロキシル基である。)

[0034] 下記式(3)で表されるアントラセン誘導体。

[化9]



(式中、 A^1 及び A^2 は、それぞれ置換もしくは無置換の核炭素数10～20の縮合芳香族環基である。

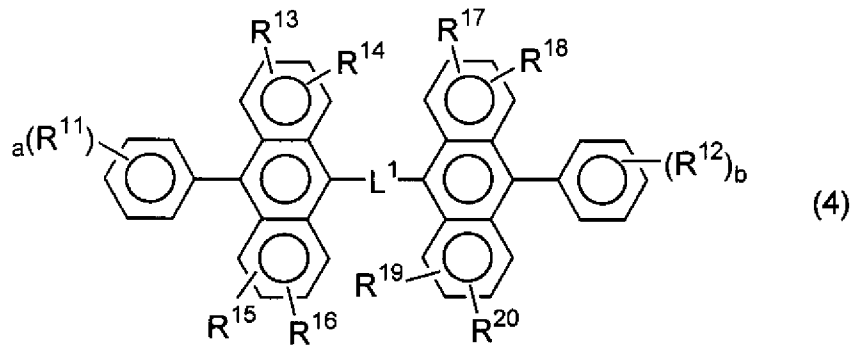
Ar^3 及び Ar^4 は、それぞれ水素原子又は置換もしくは無置換の核炭素数6～50のアリール基である。

R^1 ～ R^{10} は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換のシリル基、カルボキシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基又はヒドロキシル基である。

Ar^3 、 Ar^4 、 R^9 及び R^{10} は、それぞれ複数であってもよく、隣接するもの同士で飽和もしくは不飽和の環状構造を形成していてもよい。))

[0035] 下記式(4)で表されるアントラセン誘導体。

[化10]



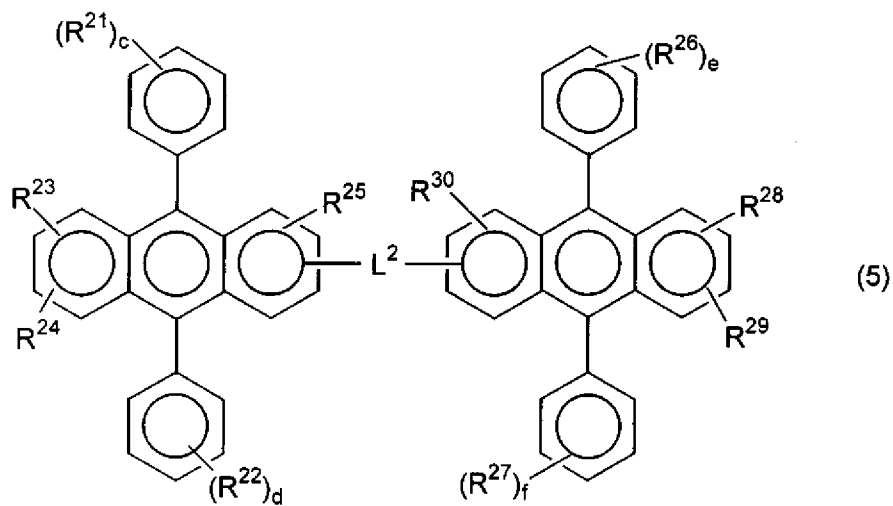
(式中、 $R^{11} \sim R^{20}$ は、それぞれ水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、置換もしくは無置換のアリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アルキルアミノ基、アルケニル基、アリールアミノ基又は置換もしくは無置換の複素環式基を示す。

a 及び b は、それぞれ1～5の整数を示し、それらが2以上の場合、 R^{11} 同士又は R^{12} 同士は、同一でも異なってもよく、また R^{11} 同士又は R^{12} 同士が結合して環を形成していてもよいし、 R^{13} と R^{14} 、 R^{15} と R^{16} 、 R^{17} と R^{18} 、 R^{19} と R^{20} が互いに結合して環を形成していてもよい。

L^1 は単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R)-$ (R はアルキル基又は置換もしくは無置換のアリール基である)、アルキレン基又はアリーレン基を示す。)

[0036] 下記式(5)で表されるアントラセン誘導体。

[化11]



(式中、 $R^{21} \sim R^{30}$ は、それぞれ水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基

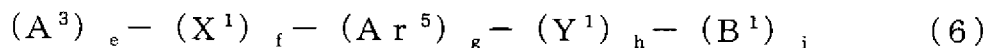
, アルコキシル基, アリーロキシ基, アルキルアミノ基, アリールアミノ基又は置換もしくは無置換の複数環基を示す。

c, d, e及びfは、それぞれ1～5の整数を示し、それらが2以上の場合、R²¹同士、R²²同士、R²⁶同士又はR²⁷同士は、同一でも異なってもよく、またR²¹同士、R²²同士、R²⁶同士又はR²⁷同士が結合して環を形成していてもよいし、R²³とR²⁴、R²⁸とR²⁹が互いに結合して環を形成していてもよい。

L²は単結合、-O-, -S-, -N(R)- (Rはアルキル基又は置換もしくは無置換のアリール基である)、アルキレン基又はアリーレン基を示す。)

[0037] 下記式(6)で表されるアントラセン誘導体。

[化12]



(式中、X¹は、それぞれ置換もしくは無置換のピレン残基である。

A³及びB¹は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数3～50の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の核炭素数1～50の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基あるいはアルキレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルケニル基あるいはアルケニレン基である。

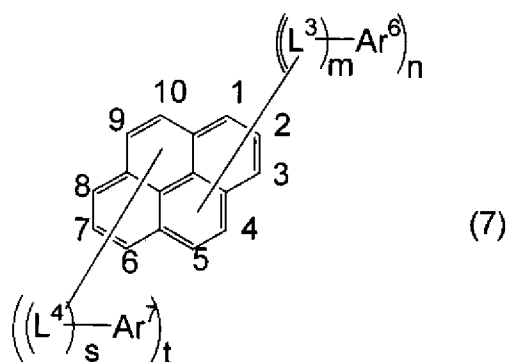
Ar⁵は、それぞれ置換もしくは無置換の核炭素数3～50の芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の核炭素数1～50の芳香族複素環基である。

Y¹は、それぞれ置換もしくは無置換のアリール基である。

fは1～3の整数、e及びiはそれぞれ0～4の整数、hは0～3の整数、gは1～5の整数である。)

[0038] 下記式(7)で表されるアントラセン誘導体。

[化13]



(式中、 Ar^6 及び Ar^7 は、それぞれ置換もしくは無置換の核炭素数6～50のアリール基である。

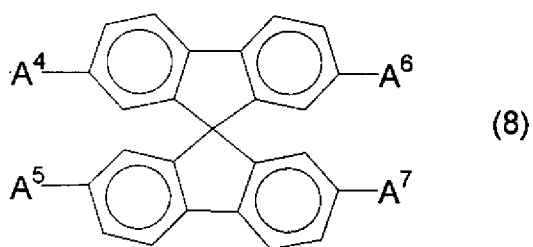
L^3 及び L^4 は、それぞれ置換もしくは無置換のフェニレン基、置換もしくは無置換のナフタレニレン基、置換もしくは無置換のフルオレニレン基又は置換もしくは無置換のジベンゾシロリレン基である。

m は0～2の整数、 n は1～4の整数、 s は0～2の整数、 t は0～4の整数である。

また、 L^3 又は Ar^6 は、ペレンの1～5位のいずれかに結合し、 L^4 又は Ar^7 は、ペレンの6～10位のいずれかに結合する。)

[0039] 下記式(8)で表されるスピオロフルオレン誘導体。

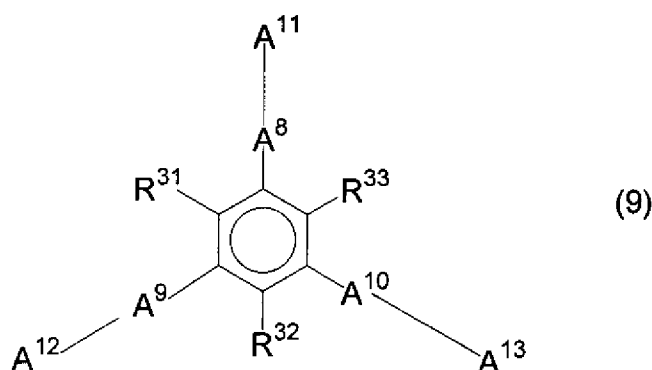
[化14]



(式中、 A^4 ～ A^7 は、それぞれ置換もしくは無置換のジフェニル基又は置換もしくは無置換のナフチル基である。)

[0040] 下記式(9)で表される縮合環含有化合物。

[化15]



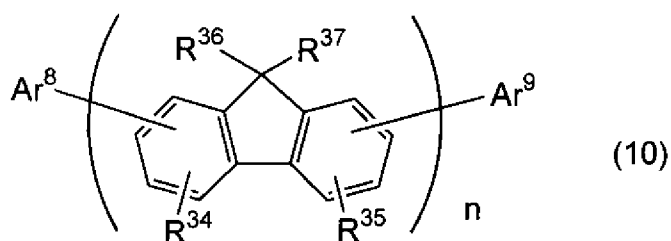
(式中、 $A^8 \sim A^{13}$ はそれぞれ水素原子、又は置換もしくは無置換の核炭素数6～50のアリール基である。

$R^{31} \sim R^{33}$ は、それぞれ水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数3～6のシクロアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数5～18のアリールオキシ基、炭素数7～18のアラルキルオキシ基、炭素数5～16のアリールアミノ基、ニトロ基、シアノ基、炭素数1～6のエステル基又はハロゲン原子を示す。

$A^8 \sim A^{13}$ のうち少なくとも1つは3環以上の縮合芳香族環を有する基である。)

[0041] 下記式(10)で表されるフルオレン化合物。

[化16]



(式中、 R^{34} 及び R^{35} は、水素原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換の複素環基、置換アミノ基、シアノ基又はハロゲン原子を示す。異なるフルオレン基に結合する R^{34} 同士、 R^{35} 同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する R^1 及び R^2 は、同じであっても異なってもよい。

R^{36} 及び R^{37} は、水素原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリール基又は置換もしくは無置換の複素環

基を示し、異なるフルオレン基に結合する R^{36} 同士、 R^{37} 同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合する R^{36} 及び R^{37} は、同じであっても異なってもよい。

Ar^8 及び Ar^9 は、ベンゼン環の合計が3個以上の置換もしくは無置換の縮合多環アリール基又はベンゼン環と複素環の合計が3個以上の置換もしくは無置換の炭素でフルオレン基に結合する縮合多環複素環基を示し、 Ar^8 及び Ar^9 は、同じであっても異なってもよい。

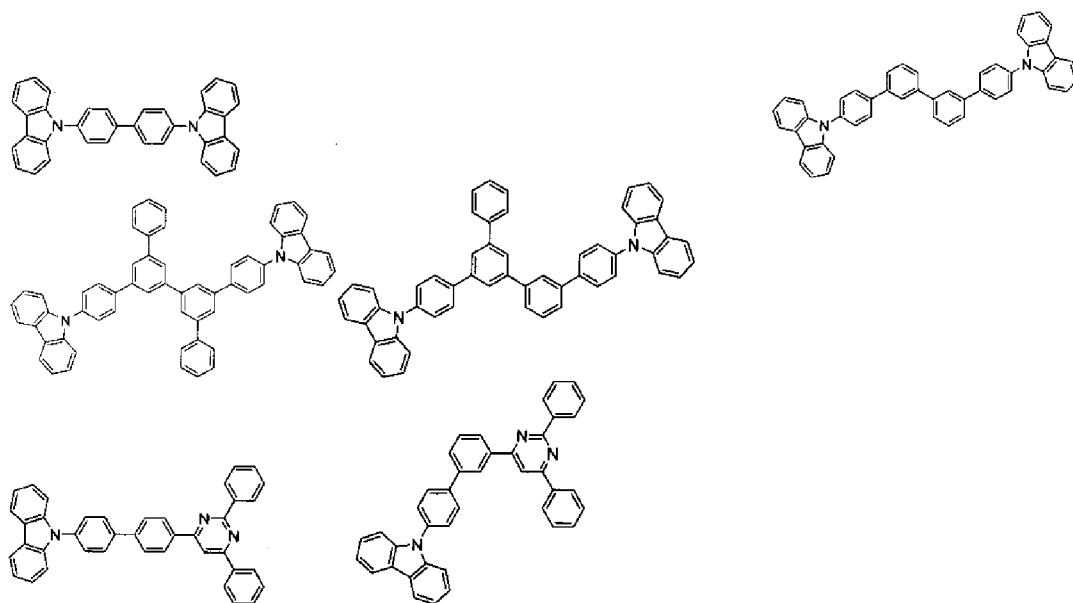
nは、1~10の整数を表す。)

- [0042] 以上のホスト材料の中でも、好ましくはアントラセン誘導体、さらに好ましくはモノアントラセン誘導体、特に好ましくは非対称アントラセンである。
- [0043] また、発光材料としては、りん光発光性の化合物を用いることもできる。りん光発光の場合は、ホスト材料にカルバゾール環を含む化合物が好ましい。りん光発光性ドーパントは三重項励起子から発光することのできる化合物であり、三重項励起子から発光する限り特に限定されないが、Ir、Ru、Pd、Pt、Os及びReからなる群から選択される少なくとも一つの金属を含む金属錯体であることが好ましい。
- [0044] カルバゾール環を含む化合物からなるりん光発光に好適なホストは、その励起状態からりん光発光性化合物へエネルギー移動が起こる結果、りん光発光性化合物を発光させる機能を有する化合物である。ホスト化合物としては励起子エネルギーをりん光発光性化合物にエネルギー移動できる化合物ならば特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができる。カルバゾール環以外に任意の複素環等を有していてもよい。
- [0045] このようなホスト化合物の具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チ

オピランジオキッド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物等が挙げられる。ホスト化合物は単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0046] 具体例としては、以下のような化合物が挙げられる。

[化17]



[0047] りん光発光性のドーパントは三重項励起子から発光することのできる化合物である。三重項励起子から発光する限り特に限定されないが、Ir、Ru、Pd、Pt、Os及びReからなる群から選択される少なくとも一つの金属を含む金属錯体であることが好ましく、ポルフィリン金属錯体又はオルトメタル化金属錯体が好ましい。ポルフィリン金属錯体としては、ポルフィリン白金錯体が好ましい。りん光発光性化合物は単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0048] オルトメタル化金属錯体を形成する配位子としては種々のものがあるが、好ましい

配位子としては、2-フェニルピリジン誘導体、7, 8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体、2-フェニルキノリン誘導体等が挙げられる。これらの誘導体は必要に応じて置換基を有してもよい。特に、フッ素化物、トリフルオロメチル基を導入したものが、青色系ドーパントとしては好ましい。さらに補助配位子としてアセチルアセトナート、ピクリン酸等の上記配位子以外の配位子を有していてもよい。

[0049] りん光発光性のドーパントの発光媒体層における含有量としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、0.1~70質量%であり、1~30質量%が好ましい。りん光発光性化合物の含有量が0.1質量%未満では発光が微弱であり、その含有効果が十分に発揮されず、70質量%を超える場合は、濃度消光と言われる現象が顕著になり素子性能が低下する恐れがある。

また、発光媒体層は、必要に応じて正孔輸送材、電子輸送材、ポリマーバインダーを含有してもよい。

[0050] さらに、発光媒体層の膜厚は、好ましくは5~50nm、より好ましくは7~50nm、最も好ましくは10~50nmである。5nm未満では発光媒体層形成が困難となり、色度の調整が困難となる恐れがあり、50nmを超えると駆動電圧が上昇する恐れがある。

[0051] [正孔注入・輸送層(正孔輸送帯域)]

有機発光媒体層の陽極側には正孔注入・輸送層をさらに積層していてもよい。正孔注入・輸送層は発光媒体層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常5.5eV以下と小さい。このような正孔注入・輸送層としては、より低い電界強度で正孔を発光媒体層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6 \text{V/cm}$ の電界印加時に、少なくとも $10^{-4} \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{秒}$ であれば好ましい。

[0052] 正孔注入・輸送層を形成する材料としては、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において正孔の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の正孔注入・輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

[0053] 具体例としては、トリアゾール誘導体(米国特許3,112,197号明細書等参照)、オ

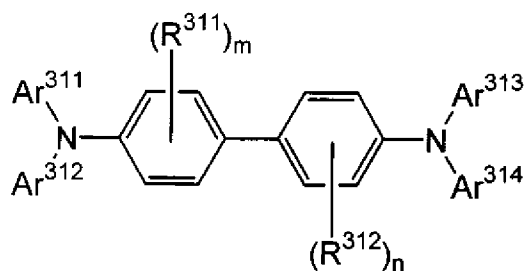
キサジアゾール誘導体(米国特許3, 189, 447号明細書等参照)、イミダゾール誘導体(特公昭37-16096号公報等参照)、ポリアリールアルカン誘導体(米国特許3, 615, 402号明細書、同第3, 820, 989号明細書、同第3, 542, 544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照)、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体(米国特許第3, 180, 729号明細書、同第4, 278, 746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照)、フェニレンジアミン誘導体(米国特許第3, 615, 404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照)、アリールアミン誘導体(米国特許第3, 567, 450号明細書、同第3, 180, 703号明細書、同第3, 240, 597号明細書、同第3, 658, 520号明細書、同第4, 232, 103号明細書、同第4, 175, 961号明細書、同第4, 012, 376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1, 110, 518号明細書等参照)、アミノ置換カルコン誘導体(米国特許第3, 526, 501号明細書等参照)、オキサゾール誘導体(米国特許第3, 257, 203号明細書等に開示のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3, 717, 462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体(特開昭61-210363号公報、同第61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93455号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体(米国

特許第4, 950, 950号明細書)、ポリシラン系(特開平2-204996号公報)、アニリン系共重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げることができる。

[0054] 正孔注入・輸送層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物(特開昭63-2956965号公報等に開示のもの)、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物(米国特許第4, 127, 412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

[0055] 正孔注入・輸送層に使用できる正孔注入・輸送材料としては、下記式で表される化合物が好ましい。

[化18]



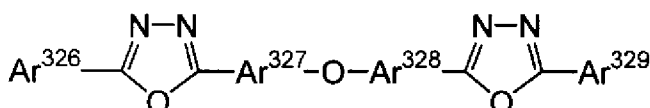
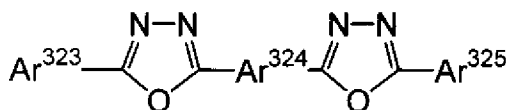
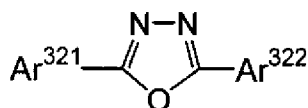
(式中、Ar³¹¹~Ar³¹⁴は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の核炭素数6~50のアリール基であり、R³¹¹~R³¹²は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6~50のアリール基又は炭素数1~50のアルキル基であり、m、nは0~4の整数である。)

[0056] 核炭素数6~50のアリール基としては、フェニル、ナフチル、ビフェニル、テルフェニル、フェナントリル基等が好ましい。尚、核炭素数6~50のアリール基は、さらに置換基により置換されていてもよく、好ましい置換基としては、炭素数1~6のアルキル基(メチル基、エチル基、イソプロピル基、n-プロピル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、核炭素数6~50のアリール基で置換されたアミノ基が挙げられる。

- [0057] また、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、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(以下NPDと略記する)、また特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4"-トリス(N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン(以下MTDATAと略記する)等を挙げることができる。
- [0058] さらに、発光媒体層の材料として示した前述の芳香族ジメチリدين系化合物の他、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入・輸送層の材料として使用することができる。
- [0059] 正孔注入・輸送層は上記の化合物を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入・輸送層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5nm~5 μ mである。この正孔注入・輸送層は、正孔輸送帯域に上記化合物を含有していれば、上述した材料の一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよく、前記正孔注入・輸送層とは別種の化合物からなる正孔注入・輸送層を積層したものであってもよい。
- [0060] [電子注入・輸送層(電子輸送帯域)]
- 有機発光媒体層の陰極側には電子注入・輸送層をさらに積層していてもよい。電子注入・輸送層は発光媒体層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きい。電子輸送層は数nm~数 μ mの膜厚で適宜選ばれるが、特に膜厚が厚いとき、電圧上昇を避けるために、 $10^4\sim 10^6$ V/cmの電界印加時に電子移動度が少なくとも 10^{-5} cm²/Vs以上であることが望ましい。
- 電子注入・輸送層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキノリン、及びその誘導体の金属錯体又は含窒素複素環を有する化合物が好適である。
- [0061] 上記8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシ(一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシシノイド化合物が挙げられる。例えば中心金属としてAlを有するAlqを電子注入・輸送層として用いることができる。
- 一方オキサジアゾール誘導体としては、以下の一般式で表される電子伝達化合物

が挙げられる。

[0062] [化19]

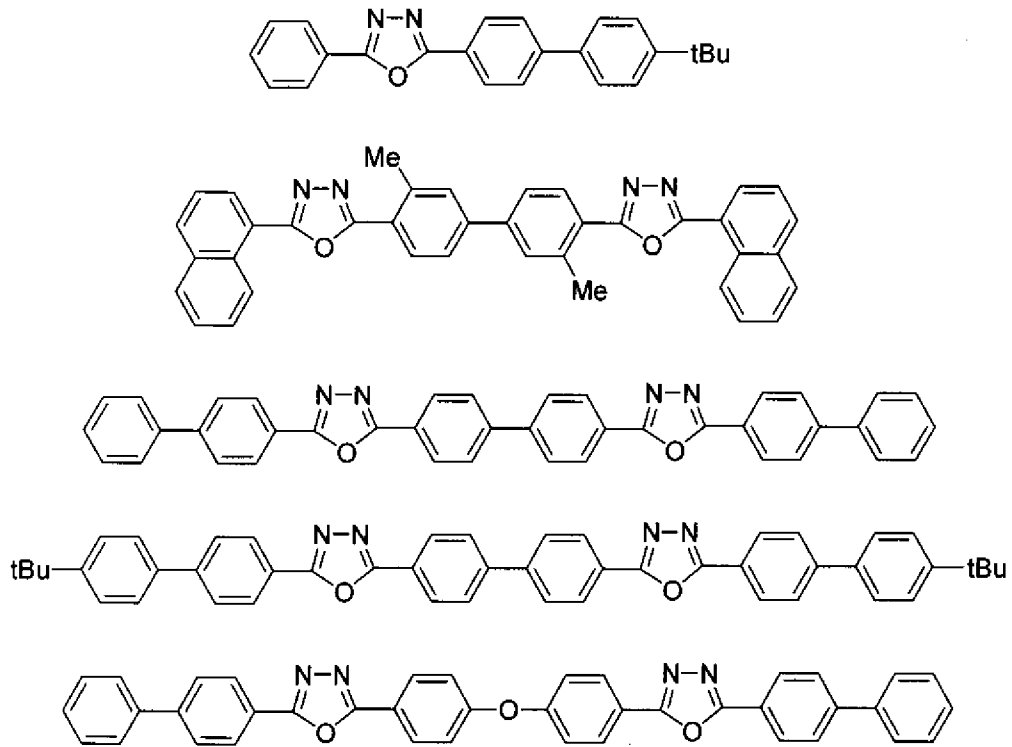


(式中Ar³²¹, Ar³²², Ar³²³, Ar³²⁵, Ar³²⁶, Ar³²⁹はそれぞれ置換もしくは無置換のアリール基を示し、それぞれ互いに同一であっても異なってもよい。またAr³²⁴, Ar³²⁷, Ar³²⁸は置換もしくは無置換のアリーレン基を示し、それぞれ同一であっても異なってもよい)

[0063] ここでアリール基としてはフェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基が挙げられる。またアリーレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基等が挙げられる。また置換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。この電子伝達化合物は薄膜形成性のものが好ましい。

上記電子伝達性化合物の具体例としては下記のを挙げる事ができる。

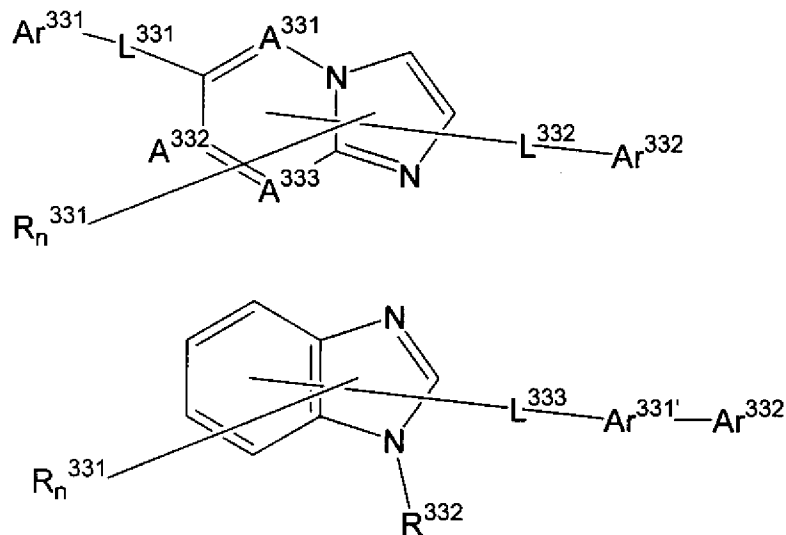
[0064] [化20]



Meはメチル基、Buはブチル基を表す。

[0065] 下記式で表される含窒素複素環誘導体

[化21]



(式中、A³³¹~A³³³は、窒素原子又は炭素原子である。

R³³¹及びR³³²は、置換もしくは無置換の炭素数6~60のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数3~60のヘテロアリール基、炭素数1~20のアルキル基、炭素数1

～20のハロアルキル基又は炭素数1～20のアルコキシ基であり、nは0から5の整数であり、nが2以上の整数であるとき、複数の R^{331} は、互いに同一又は異なってもよい。

また、隣接する複数の R^{331} 基同士で互いに結合して、置換又は未置換の炭素環式脂肪族環、あるいは、置換又は未置換の炭素環式芳香族環を形成していてもよい。

Ar^{331} は、置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリール基、又は置換もしくは無置換の炭素数3～60のヘテロアリール基である。

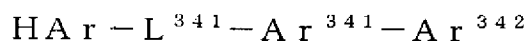
$Ar^{331'}$ は、置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリーレン基、又は置換もしくは無置換の炭素数3～60のヘテロアリーレン基である。

Ar^{332} は、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のハロアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリール基、又は置換もしくは無置換の炭素数3～60のヘテロアリール基である。

ただし、 Ar^{331} 、 Ar^{332} のいずれか一方は、置換もしくは無置換の炭素数10～60の縮合環基、又は置換もしくは無置換の炭素数3～60のヘテロ縮合環基である。

L^{331} 、 L^{332} 及び L^{333} は、それぞれ単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～60の縮合環、置換もしくは無置換の炭素数3～60のヘテロ縮合環又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。)

[0066] 特願2003-004193号に示されている下記式で示される含窒素複素環誘導体
[化22]



(式中、HArは、置換もしくは無置換の炭素数3～40の含窒素複素環であり、

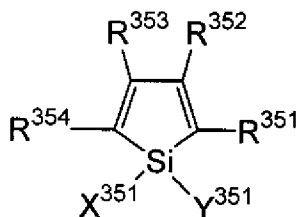
L^{341} は、単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数3～60のヘテロアリーレン基又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基であり、

Ar^{341} は、置換もしくは無置換の炭素数6～60の2価の芳香族炭化水素基であり、

Ar^{342} は、置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3～60のヘテロアリール基である。)

[0067] 特開平09-087616に示されている下記式で表されるシラシクロペンタジエン誘導体

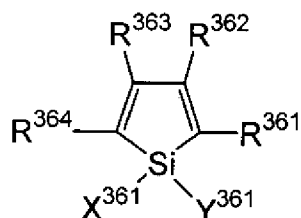
[化23]



(式中、 X^{351} 及び Y^{351} は、それぞれ独立に炭素数1から6までの飽和若しくは不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アルケニルオキシ基、アルキニルオキシ基、ヒドロキシ基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のヘテロ環又は X^{351} と Y^{351} が結合して飽和又は不飽和の環を形成した構造であり、 $R^{351} \sim R^{354}$ は、それぞれ独立に水素、ハロゲン、置換もしくは無置換の炭素数1から6までのアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、パーフルオロアルキル基、パーフルオロアルコキシ基、アミノ基、アルキルカルボニル基、アリールカルボニル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アゾ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、アルコキシカルボニルオキシ基、アリールオキシカルボニルオキシ基、スルフィニル基、スルフォニル基、スルファニル基、シリル基、カルバモイル基、アリール基、ヘテロ環基、アルケニル基、アルキニル基、ニトロ基、ホルミル基、ニトロソ基、ホルミルオキシ基、イソシアノ基、シアネート基、イソシアネート基、チオシアネート基、イソチオシアネート基もしくはシアノ基又は隣接した場合には置換若しくは無置換の環が縮合した構造である。)

[0068] 特開平09-194487に示されている下記式で表されるシラシクロペンタジエン誘導体

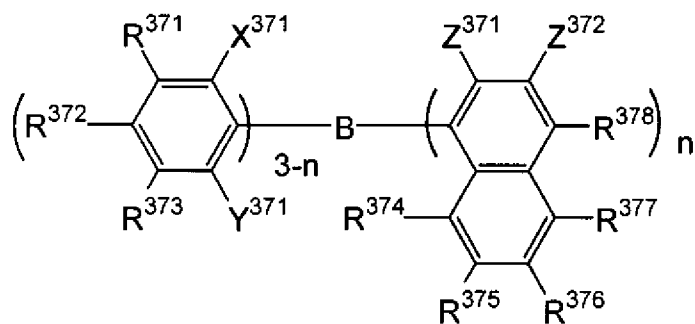
[化24]



(式中、 X^{361} 及び Y^{361} は、それぞれ独立に炭素数1から6までの飽和もしくは不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アルケニルオキシ基、アルキニルオキシ基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のヘテロ環又は X^{361} と Y^{361} が結合して飽和もしくは不飽和の環を形成した構造であり、 $R^{361} \sim R^{364}$ は、それぞれ独立に水素、ハロゲン、置換もしくは無置換の炭素数1から6までのアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、パーフルオロアルキル基、パーフルオロアルコキシ基、アミノ基、アルキルカルボニル基、アリールカルボニル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アゾ基、アルキルカルボニルオキシ基、アリールカルボニルオキシ基、アルコキシカルボニルオキシ基、アリールオキシカルボニルオキシ基、スルフィニル基、スルフォニル基、スルファニル基、シリル基、カルバモイル基、アリール基、ヘテロ環基、アルケニル基、アルキニル基、ニトロ基、ホルミル基、ニトロソ基、ホルミルオキシ基、イソシアノ基、シアネート基、イソシアネート基、チオシアネート基、イソチオシアネート基、もしくはシアノ基又は隣接した場合には置換もしくは無置換の環が縮合した構造である(但し、 R^{361} 及び R^{364} がフェニル基の場合、 X^{361} 及び Y^{361} は、アルキル基及びフェニル基ではなく、 R^{361} 及び R^{364} がチエニル基の場合、 X^{361} 及び Y^{361} は、一価炭化水素基を、 R^{362} 及び R^{363} は、アルキル基、アリール基、アルケニル基又は R^{362} と R^{363} が結合して環を形成する脂肪族基を同時に満たさない構造であり、 R^{361} 及び R^{364} がシリル基の場合、 R^{362} 、 R^{363} 、 X^{361} 及び Y^{361} は、それぞれ独立に、炭素数1から6の一価炭化水素基又は水素原子でなく、 R^{361} 及び R^{362} でベンゼン環が縮合した構造の場合、 X^{361} 及び Y^{361} は、アルキル基及びフェニル基ではない。)

[0069] 特再第2000-040586号公報に示されているに示されている下記式で表されるポラン誘導体

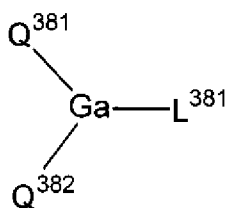
[化25]



(式中、 $R^{371} \sim R^{378}$ 及び Z^{372} は、それぞれ独立に、水素原子、飽和もしくは不飽和の炭化水素基、芳香族基、ヘテロ環基、置換アミノ基、置換ボリル基、アルコキシ基又はアリーロキシ基を示し、 X^{371} 、 Y^{371} 及び Z^{371} は、それぞれ独立に、飽和もしくは不飽和の炭化水素基、芳香族基、ヘテロ環基、置換アミノ基、アルコキシ基又はアリーロキシ基を示し、 Z^{371} と Z^{372} の置換基は相互に結合して縮合環を形成してもよく、 n は1～3の整数を示し、 n が2以上の場合、 Z^{371} は異なってもよい。但し、 n が1、 X^{371} 、 Y^{371} 及び R^{372} がメチル基であって、 R^{378} が水素原子又は置換ボリル基の場合、及び n が3で Z^{371} がメチル基の場合を含まない。)

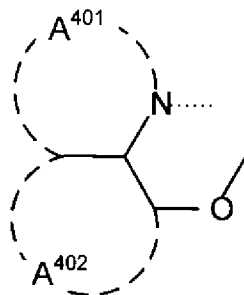
[0070] 特開平10-088121に示されている下記式で示される化合物

[化26]



(式中、 Q^{381} 及び Q^{382} は、それぞれ独立に、下記式で示される配位子を表し、 L^{381} は、ハロゲン原子、置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のシクロアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、置換もしくは未置換の複素環基、 $-OR^{391}$ (R^{391} は水素原子、置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のシクロアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基又は置換もしくは未置換の複素環基である。) 又は $-O-Ga-Q^{391}$ (Q^{391}) (Q^{391} 及び Q^{392} は、 Q^{381} 及び Q^{382} と同じ意味を表す。) で示される配位子を表す。)

[0071] [化27]



(式中、環 A^{401} 及び A^{402} は、互いに結合した置換もしくは未置換のアリール環又は複素環構造である。)

[0072] 上記式の配位子を形成する環 A^{401} 及び A^{402} の置換基の具体的な例を挙げると、塩素、臭素、ヨウ素、フッ素のハロゲン原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ステアシル基、トリクロロメチル基等の置換もしくは未置換のアルキル基、フェニル基、ナフチル基、3-メチルフェニル基、3-メトキシフェニル基、3-フルオロフェニル基、3-トリクロロメチルフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、3-ニトロフェニル基等の置換もしくは未置換のアリール基、メトキシ基、n-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、トリクロロメトキシ基、トリフルオロエトキシ基、ペンタフルオロプロポキシ基、2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロポキシ基、1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロ-2-プロポキシ基、6-(パーフルオロエチル)ヘキシルオキシ基等の置換もしくは未置換のアルコキシ基、フェノキシ基、p-ニトロフェノキシ基、p-tert-ブチルフェノキシ基、3-フルオロフェノキシ基、ペンタフルオロフェニル基、3-トリフルオロメチルフェノキシ基等の置換もしくは未置換のアリールオキシ基、メチルチオ基、エチルチオ基、tert-ブチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、トリフルオロメチルチオ基等の置換もしくは未置換のアルキルチオ基、フェニルチオ基、p-ニトロフェニルチオ基、p-tert-ブチルフェニルチオ基、3-フルオロフェニルチオ基、ペンタフルオロフェニルチオ基、3-トリフルオロメチルフェニルチオ基等の置換もしくは未置換のアリールチオ基、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、メチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジプロピルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基等のモノ又はジ置換アミノ基、ビス(アセトキシメチル)アミノ基、ビス(アセトキシ

エチル)アミノ基、ビスアセトキシプロピル)アミノ基、ビス(アセトキシブチル)アミノ基等のアシルアミノ基、水酸基、シロキシ基、アシル基、カルバモイル基、メチルカルバモイル基、ジメチルカルバモイル基、エチルカルバモイル基、ジエチルカルバモイル基、プロイピルカルバモイル基、ブチルカルバモイル基、フェニルカルバモイル基等の置換もしくは未置換のカルバモイル基、カルボン酸基、スルホン酸基、イミド基、シクロペンタン基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、フェナントリル基、フルオレニル基、ピレニル基等のアリール基、ピリジニル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、インドリニル基、キノリニル基、アクリジニル基、ピロリジニル基、ジオキサニル基、ピペリジニル基、モルフォリジニル基、ピペラジニル基、カルバゾリル基、フラニル基、チオフェニル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、チアジアゾリル基、ベンゾチアゾリル基、トリアゾリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基等の複素環基等がある。また、以上の置換基同士が結合してさらなる6員アリール環もしくは複素環を形成してもよい。

[0073] 本発明の好ましい形態に、電子を輸送する領域又は陰極と有機層の界面領域に、還元性ドーパントを含有する素子がある。ここで、還元性ドーパントとは、電子輸送性化合物を還元ができる物質と定義される。従って、一定の還元性を有するものであれば、様々なものが用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物又は希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体、希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも一つの物質を好適に使用することができる。

[0074] また、より具体的に、好ましい還元性ドーパントとしては、Na(仕事関数:2.36eV)、K(仕事関数:2.28eV)、Rb(仕事関数:2.16eV)及びCs(仕事関数:1.95eV)からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属や、Ca(仕事関数:2.9eV)、Sr(仕事関数:2.0~2.5eV)、及びBa(仕事関数:2.52eV)からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ土類金属が挙げられる仕事関数が2.9eV以下のものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、K、Rb及びCsか

らなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属であり、さらに好ましくは、Rb又はCsであり、最も好ましいのは、Csである。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。また、仕事関数が2.9eV以下の還元性ドーパントとして、これら2種以上のアルカリ金属の組み合わせも好ましく、特に、Csを含んだ組み合わせ、例えば、CsとNa、CsとK、CsとRb又はCsとNaとKとの組み合わせであることが好ましい。Csを組み合わせることで、還元能力を効率的に発揮することができ、電子注入域への添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

[0075] 本発明においては陰極と有機層の間に絶縁体や半導体で構成される電子注入・輸送層をさらに設けてもよい。この時、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入・輸送層がこれらのアルカリ金属カルコゲナイド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲナイドとしては、例えば、 Li_2O 、 LiO 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び NaO が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 、及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及び NaCl 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 といったフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

[0076] また、電子注入・輸送層を構成する半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入・輸送層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入・輸送層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、

より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。尚、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

[0077] 5. 中間接続層

中間接続層はアクセプター層／ドナー層／電子輸送材料層の積層体であり、二つの発光層を接続するために用いられる。

[0078] [アクセプター層]

アクセプターは、易還元性の有機化合物である。

化合物の還元しやすさは、還元電位で測定することができる。本発明では飽和カロメル(SCE)電極を参照電極とした還元電位において、好ましくは -0.8V 以上、より好ましくは -0.3V 以上であり、特に好ましくはテトラシアノキノジメタン(TCNQ)の還元電位(約 0V)より大きな値を持つ化合物が好ましい。

[0079] アクセプターは、好ましくは、電子吸引性の置換基又は電子欠乏環を有する有機化合物である。

電子吸引性の置換基として、例えば、ハロゲン、 CN 、カルボニル基、アリアルホウ素基等が挙げられる。

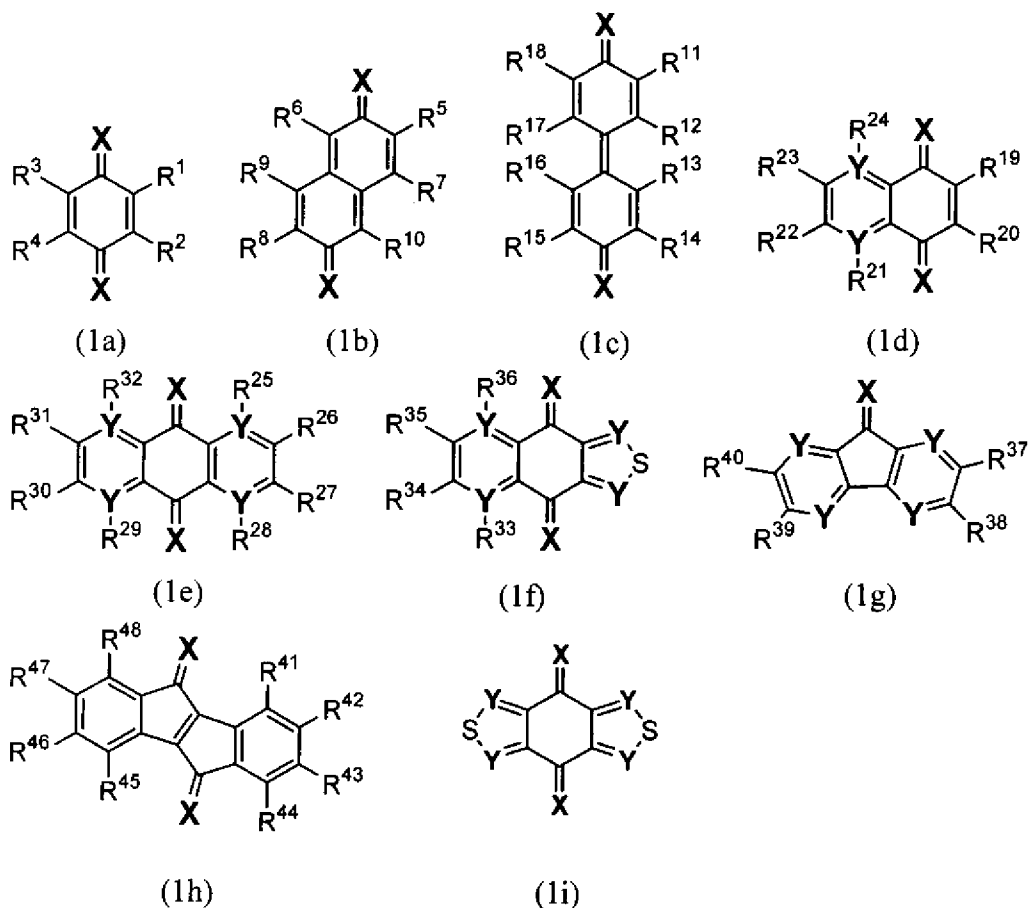
電子欠乏環として、例えば、2-ピリジル、3-ピリジル、4-ピリジル、2-キノリル、3-キノリル、4-キノリル、2-イミダゾール、4-イミダゾール、3-ピラゾール、4-ピラゾール、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、シンノリン、フタラジン、キナゾリン、キノキサリン、3-(1, 2, 4-N)-トリアゾリル、5-(1, 2, 4-N)-トリアゾリル、5-テトラゾリル、4-(1-O, 3-N)-オキサゾール、5-(1-O, 3-N)-オキサゾール、4-(1-S, 3-N)-チアゾール、5-(1-S, 3-N)-チアゾール、2-ベンゾキサゾール、2-ベンゾチアゾール、4-(1, 2, 3-N)-ベンゾトリアゾール、及びベンズイミダゾールからなる群から選択される化合物等が挙げられるが、必ずしもこれらに限定されるわけではない。

[0080] アクセプターは、好ましくはキノイド誘導体、アリアルボラン誘導体、チオピランジオキソイド誘導体、ナフタルイミド誘導体等のイミド誘導体、ヘキサアザトリフェニレン誘導

体等がある。

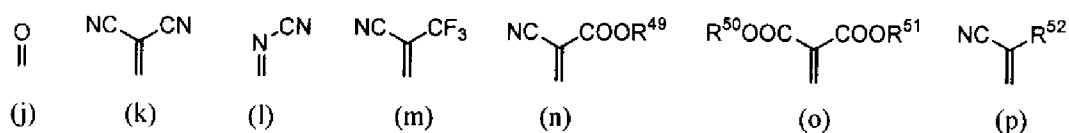
[0081] キノイド誘導体としては下記に示したような化合物が好ましい。

[化28]



(式中、 $R^1 \sim R^{48}$ は、それぞれ水素、ハロゲン、フルオロアルキル基、シアノ基、アルコキシ基、アルキル基又はアリアル基である。ただし、 $R^1 \sim R^{48}$ が同一分子中で全て、水素又はフッ素であるものは除く。Xは電子吸引基であり、下記式(j)～(p)の構造のいずれかからなる。好ましくは、(j)、(k)、(l)の構造である。

[化29]

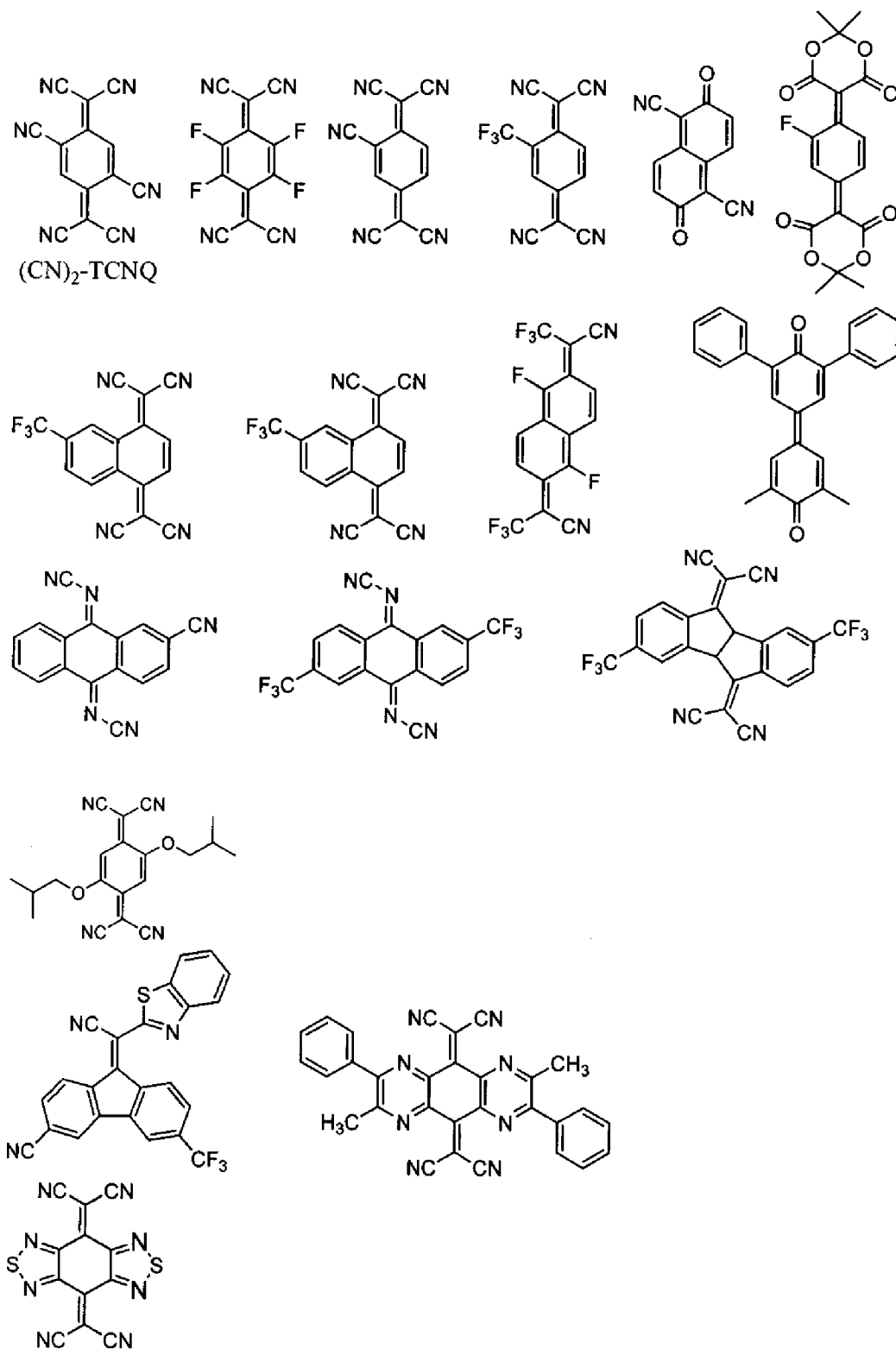


(式中、 $R^{49} \sim R^{52}$ は、それぞれ水素、フルオロアルキル基、アルキル基、アリアル基又は複素環基であり、 R^{50} と R^{51} が環を形成してもよい。)

Yは、 $-N=$ 又は $-CH=$ である。）

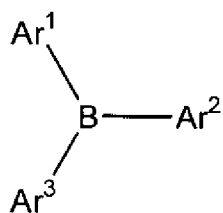
[0082] キノイド誘導体の具体例としては、以下の化合物が挙げられる。

[化30]

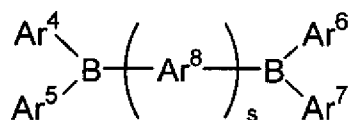


[0083] アリールボラン誘導体として、下記構造を有する化合物が好ましい。

[化31]



(2a)

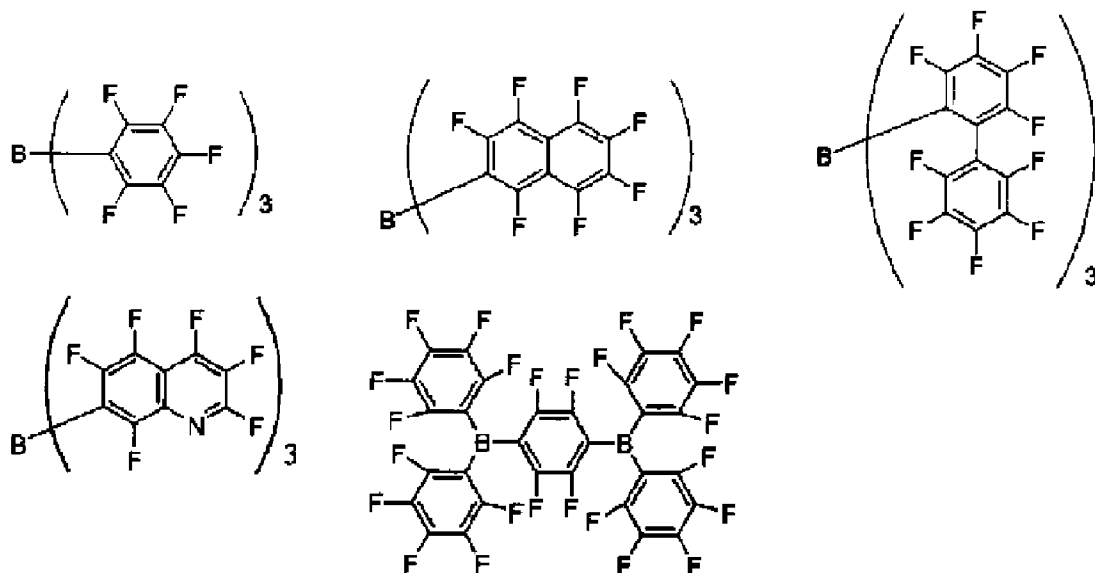


(2b)

(式中、 $Ar^1 \sim Ar^7$ は、それぞれ電子吸引基を有するアリール基(複素環を含む)である。 Ar^8 は、電子吸引基を有するアリーレン基である。 S は1又は2である。)

[0084] アリールボラン誘導体の具体例としては、以下の化合物が挙げられる。

[化32]



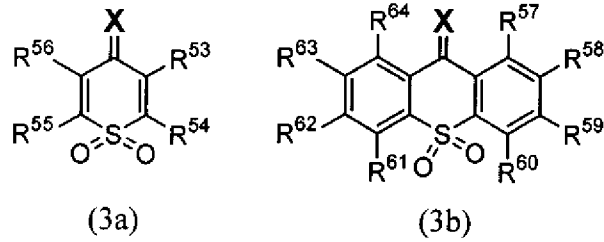
[0085] 特に好ましくは、少なくとも一個のフッ素をアリールへの置換基として有する化合物であり、トリス β -(ペンタフルオロナフチル)ボラン(PNB)等があげられる。

[0086] イミド誘導体として、好ましくは、ナフタレンテトラカルボン酸ジイミド化合物及びピロメリット酸ジイミド化合物である。

[0087] チオピランジオキシド誘導体として、下記式(3a)に示される化合物が、チオキサンテンジオキシド誘導体として、下記式(3b)に示される化合物が、それぞれ挙げられる。

。

[化33]



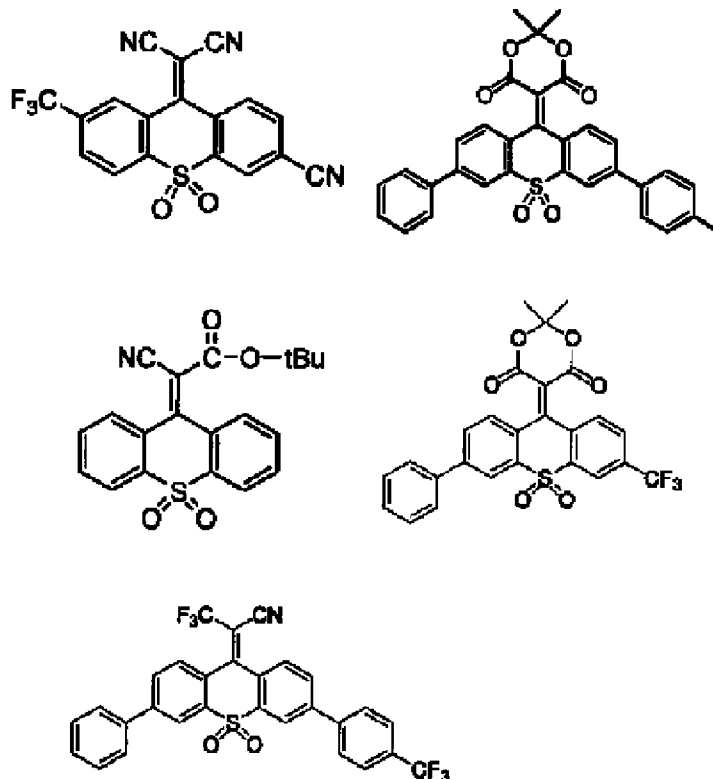
式(3a)及び式(3b)において、 $R^{53} \sim R^{64}$ は、それぞれ水素、ハロゲン、フルオロアルキル基、シアノ基、アルキル基又はアリール基である。好ましくは、水素、シアノ基である。

式(3a)及び式(3b)において、Xは電子吸引基を示し式(1a)～(1i)のXと同じである。好ましくは、(j)、(k)、(l)の構造である。

[0088] $R^{53} \sim R^{64}$ が示すハロゲン、フルオロアルキル基、アルキル基及びアリール基は $R^1 \sim R^{48}$ と同様である。

[0089] 式(3a)に示されるチオピランジオキソド誘導体、式(3b)に示されるチオキサテンジオキソド誘導体の具体例を以下に示す。

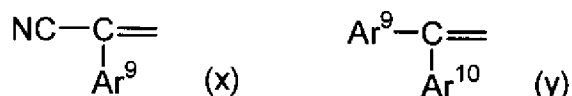
[化34]



(式中、tBuはt-ブチル基である。)

[0090] さらに上記の式(1a)～(1i)、(3a)～(3b)において、電子吸引性基Xは、下記式で表される置換基(x)又は(y)でもよい。

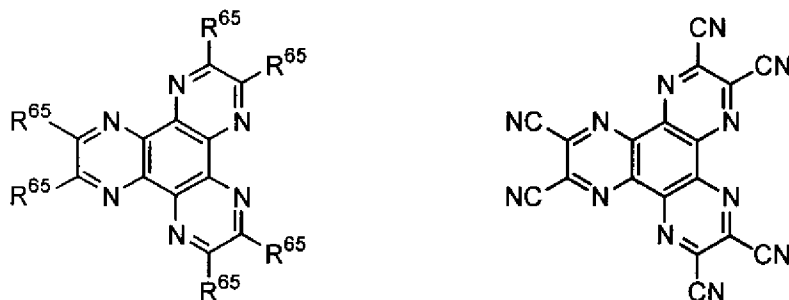
[化35]



[0091] 式中、Ar⁹及びAr¹⁰は置換もしくは無置換の複素環、置換もしくは無置換のアリールオキシカルボニル又はアルデヒドであり、好ましくは、ピリジン、ピラジン、キノキサリンである。Ar⁹とAr¹⁰は互いに連結し5員又は6員の環状構造を形成してもよい。

[0092] ヘキサアザトリフェニレン誘導体としては下記に挙げられる構造が好ましく、特に好ましくはシアノ基を有する化合物である。

[化36]



(式中、R⁶⁵は、それぞれ、シアノ基、アリールオキシカルボニル基、アルコキシカルボニル基、ジアルキルカルバモイル基、ジアリールカルバモイル基、ハロゲン原子、ニトロ基、又はカルボキシル基である。)

[0093] アクセプターは、好ましくは、薄膜形成性を有する。即ち、蒸着でアクセプター層を形成できる。「薄膜を形成できる」とは基板上に真空蒸着、スピコート等の一般的な薄膜形成方法にて平坦な薄膜を作成できることである。ここで平坦とは、薄膜の凹凸が小さいということであり、好ましくは、面粗さ(Ra)が10nm以下であり、より好ましくは、面粗さ(Ra)が1.5nm以下であり、さらに好ましくは、面粗さ(Ra)が1nm以下である。尚、面粗さは原子間力顕微鏡(AFM)により測定ができる。

薄膜形成性を有する有機化合物として、好ましくは非晶性の有機化合物であり、より好ましくは、非晶性のキノジメタン誘導体であり、さらに好ましくは非晶性かつCN-基の数が5以上のキノジメタン誘導体である。例えば、上記の(CN)₂-TCNQが挙げられる。

[0094] アクセプター層に含まれるアクセプターの含有量は、好ましくは層全体に対して1～100モル%であり、より好ましくは50～100モル%である。

アクセプター層は、アクセプターの他に、正孔輸送性で光透過性のあるものを含有できるが、必ずしもこれに限定されるものではない。

アクセプター層の膜厚は、好ましくは、1～100nmである。

[0095] [ドナー層]

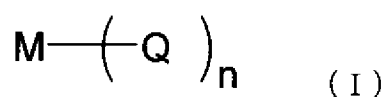
本発明の有機EL素子において、ドナー層とは、ドナー性金属、ドナー性金属化合物及びドナー性金属錯体から選ばれる群のうち少なくとも一種を、ドナーとして含有する層である。

[0096] ドナー性金属とは、仕事関数3.8eV以下の金属をいい、好ましくはアルカリ金属、アルカリ土類金属及び希土類金属であり、より好ましくはCs, Li, Na, Sr, K, Mg, Ca, Ba, Yb, Eu及びCeである。

[0097] ドナー性金属化合物とは、上記のドナー性金属を含む化合物であり、好ましくはアルカリ金属、アルカリ土類金属又は希土類金属を含む化合物であり、より好ましくはこれらの金属のハロゲン化物、酸化物、炭酸塩、ホウ酸塩である。例えば、MO_x (Mはドナー性金属、xは0.5～1.5)、MF_x (xは1～3)、M(CO₃)_x (xは0.5～1.5)で表される化合物である。

[0098] ドナー性金属錯体とは、上記のドナー性金属の錯体であり、好ましくはアルカリ金属、アルカリ土類金属又は希土類金属の有機金属錯体である。好ましくは下記式(I)で表される有機金属錯体である。

[化37]



(式中、Mはドナー性金属であり、Qは配位子であり、好ましくはカルボン酸誘導体、ジケトン誘導体、キノリン誘導体であり、nは1～4の整数である。)

ドナー性金属錯体の具体例としては、特開2005-72012号公報に記載のタンゲステン水車等が挙げられる。さらに、特開平11-345687号公報に記載された中心金属がアルカリ金属、アルカリ土類金属であるフタロシアニン化合物等もドナー性金属錯体として使用できる。

[0099] 上記のドナーは一種単独で使用してもよいし、二種以上を組み合わせ使用してもよい。

ドナー層に含まれるドナーの含有量は、好ましくは、層全体に対して1～100モル%であり、より好ましくは50～100モル%である。

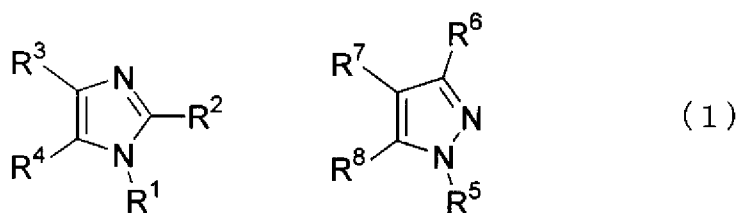
ドナー層は、上記のドナーの他に、光透過性のある物質であれば、単一又は複数種類の物質を含有できる。具体的には、アミン化合物、縮合環化合物、含窒素環化合物、金属錯体等の有機物や、金属酸化物、金属窒化物、金属フッ化物、炭酸塩等の無機物を用いることができるが、必ずしもこれに限定されるものではない。

ドナー層の膜厚は、好ましくは、1～100nmである。

[0100] [電子輸送材料層]

電子輸送材料層には、非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物を用いる。好ましくは含窒素5員複素環構造を含む化合物である。具体的には、下記式(1)で表される化合物が好ましい。

[化38]



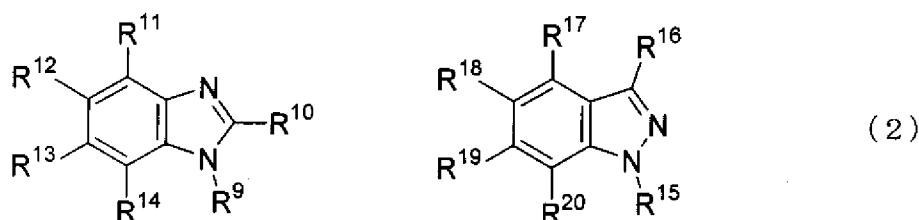
(式中、R¹～R⁸はそれぞれ、水素原子、置換もしくは無置換の核原子数5～60のアリーール基、置換もしくは無置換の核原子数5～60のヘテロアリーール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～50のシクロア

ルキル基、置換もしくは無置換の核原子数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーロキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基又はカルボキシル基であり、

$R^1 \sim R^8$ の隣り合う置換基の一组が互いに結合して芳香環又は複素環を形成していてもよい。))

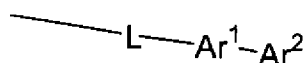
[0101] また、下記式(2)で表される化合物を使用できる。

[化39]



(式中、 $R^9 \sim R^{20}$ はそれぞれ、水素原子、置換もしくは無置換の核原子数5～60のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数5～60のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーロキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基又はカルボキシル基であり、 $R^9 \sim R^{20}$ の隣り合う基が互いに結合して芳香環を形成していてもよく、 $R^9 \sim R^{20}$ の少なくとも1つは下記式で示される置換基である。

[化40]



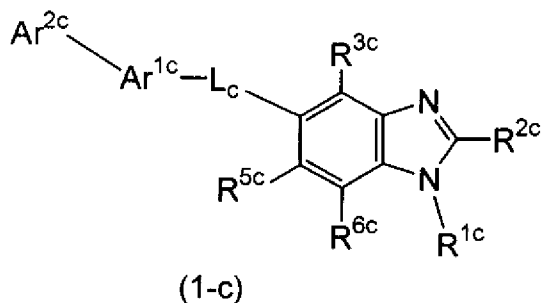
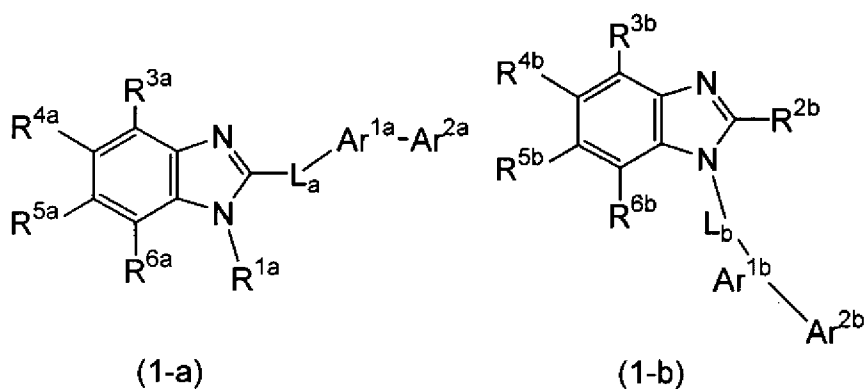
(Lは、置換もしくは無置換の炭素数6~60のアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数5~60のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基であり、

Ar¹は、置換もしくは無置換の炭素数6~60のアリーレン基、置換もしくは無置換のピリジニレン基又は置換もしくは無置換のキノリニレン基であり、

Ar²は、水素原子、置換もしくは無置換の核原子数5~60のアリール基、置換もしくは無置換のピリジル基、置換もしくは無置換のキノリル基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3~50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数6~50のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基又はカルボキシル基である。))

[0102] 上記式(2)で表される化合物の具体例を以下に例示する。

[化41]



(式中において、 $R^{1a} \sim R^{5c}$ 、 $L_a \sim L_c$ 、 $Ar^{1a} \sim Ar^{2c}$ は、上記式(2)における $R^9 \sim R^{20}$ 、 L 、 Ar^1 、 Ar^2 とそれぞれ同じである。)

[0103] $L_a \sim L_c$ 及び $Ar^{1a} \sim Ar^{1c}$ は、好ましくは置換もしくは無置換のフェニレン基、置換もしくは無置換のビフェニレン基、置換もしくは無置換のナフチレン基又は置換もしくは無置換のアントラセニレン基、置換もしくは無置換のピリジレン基である。より好ましくはフェニレン基、メチル基で置換されたフェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基又はアントラセニレン基である。

$Ar^{2a} \sim Ar^{2c}$ は、好ましくは置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基、置換もしくは無置換のナフチル基、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基である。より好ましくはフェニル基、メチル基で置換されたフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、ナフチル基で置換されたフェニル基である。

R^{1a} 、 R^{1c} は、好ましくは置換もしくは無置換の炭素数1～6のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基である。より好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、フェニル基、メチル基で置換されたフェニル基、ビフェニル基、ナフチル基である。

R^{2b} 、 R^{2c} は、好ましくは水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～6のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基である。より好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、フェニル基、メチル基で置換されたフェニル基、ビフェニル基、ナフチル基である。

$R^{3a} \sim R^{6a}$ 、 $R^{3b} \sim R^{6b}$ 、 $R^{3c} \sim R^{6c}$ は、好ましくは水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～6のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基、シアノ基である。より好ましくは水素原子、メチル基、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、シアノ基、トリフルオロメチル基である。

[0104] 電子輸送材料層の膜厚は、好ましくは0.1～100nmである。

[0105] [その他]

尚、上述したように、本発明の中間接続層は少なくとも1つはアクセプター層／ドナー層／電子輸送材料層の積層体であるが、他の中間接続層は公知の中間接続層

であってもよい。そのような中間接続層を構成する材料の例としては、In, Sn, Zn, Ti, Zr, Hf, V, Mo, Cu, Ga, Sr, La, Ru等の金属の酸化物、窒化物、ヨウ化物、ホウ化物等を挙げることができる。また、これらの金属の複数種類からなる多元系金属化合物を挙げることができる。その具体例としては、例えば、ITO、IZO、 SnO_x 、 ZnO_x 、 TiN 、 ZrN 、 HfN 、 TiO_x 、 VO_x 、 MoO_x 、 CuI 、 InN 、 GaN 、 CuAlO_2 、 CuGaO_2 、 SrCu_2O_2 、 LaB_6 、 RuO_x の透明導電材料を用いることができる。この中でも特に、ITO、IZO、 SnO_x 、 ZnO_x 、 TiO_x 、 VO_x 、 MoO_x 、 RuO_x 等の導電性金属酸化物が好適に用いられる。

[0106] 発光素子の視野角特性の向上等のため、中間接続層として、低屈折率材料と前記透明導電材料とを含む膜を用いることができる。低屈折率材料としては、金属酸化物(SiO_x 等)や金属フッ化物(NaF 、 LiF 、 CaF_2 、 Na_3AlF_6 、 AlF_3 、 MgF_2 、 ThF_4 、 LaF_4 、 NdF_3 等)等の金属ハロゲン化物である無機化合物、含フッ素樹脂等の有機化合物を用いることができる。

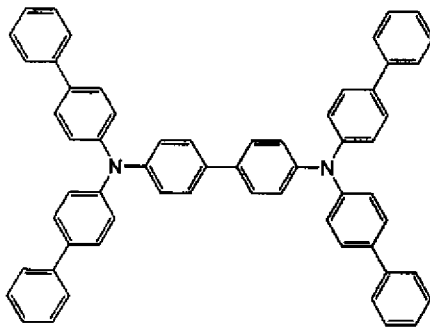
[実施例]

[0107] 以下、本発明の有機EL素子用材料及び有機EL素子について、実施例をもとに詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されない。

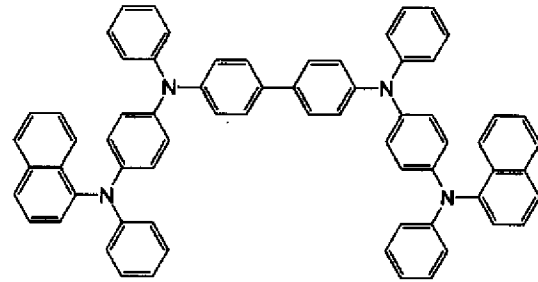
[0108] <化合物>

実施例及び比較例に使用した材料を以下に示す。

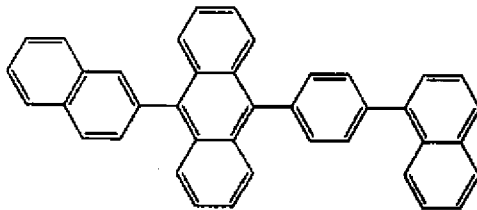
[化42]



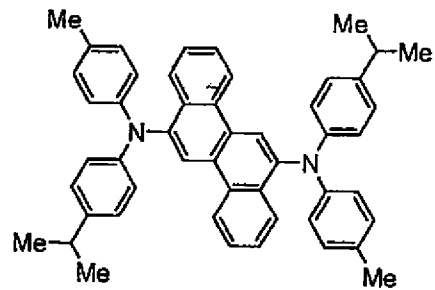
HT 2



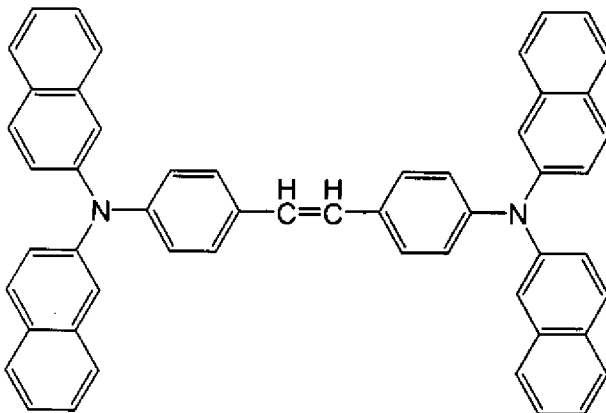
HT 1



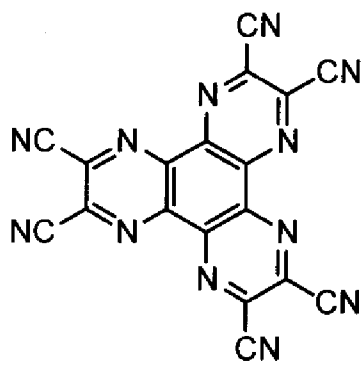
BH



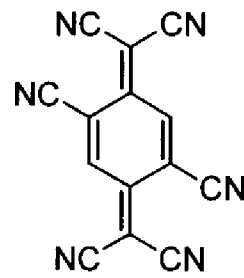
BD 1



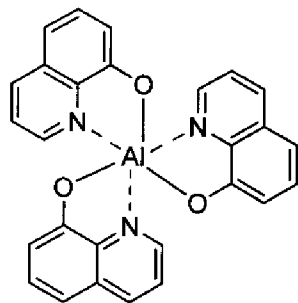
BD 2



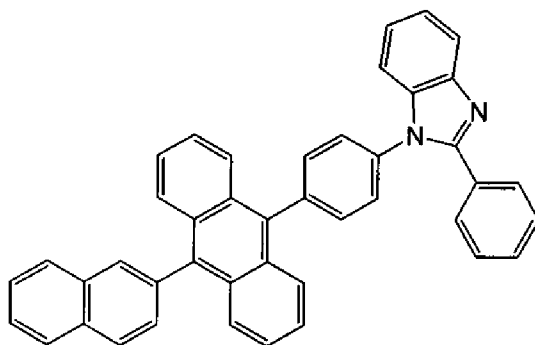
Ac 1



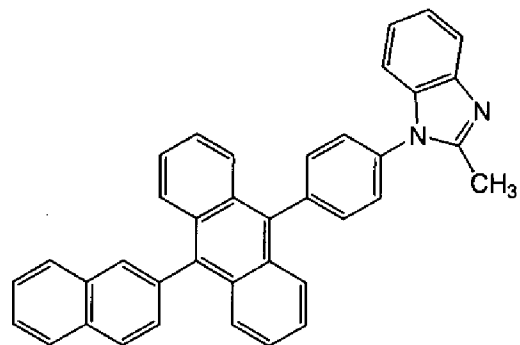
Ac 2



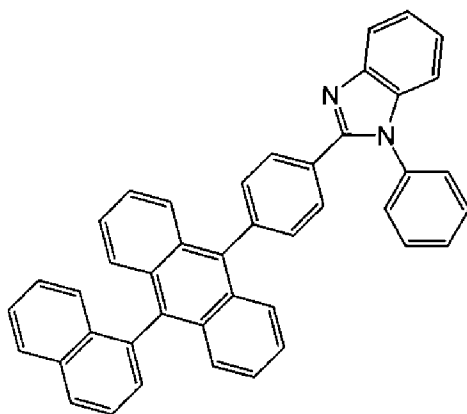
Al q



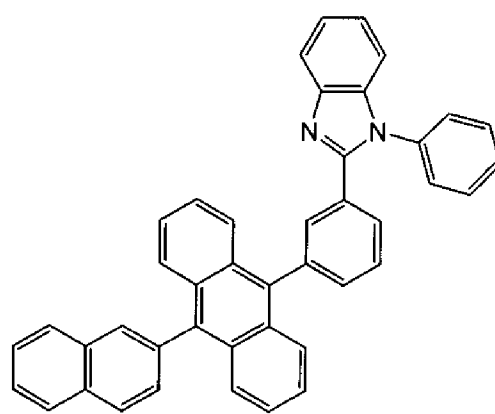
ET1



ET2



ET3



ET4

<アクセプター含有層に用いる材料の還元電位>

アクセプターAc1、Ac2についてサイクリックボルタンメトリ測定をした。その結果、飽和カロメル(SCE)電極を参照電極とした還元電位は -0.07V 、 0.71V であった。

[0109] <評価方法>

(1) 駆動電圧

電流密度が $10\text{mA}/\text{cm}^2$ となるようにITOとAl間に通電したときの電圧(単位:V)を計測した。

(2) 発光効率

電流密度 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 印加時のELスペクトルを分光放射輝度計CS1000A(コニカミノルタ社製)で計測し、発光効率(単位:cd/A)を算出した。

[0110] 実施例1

陽極/第1有機発光層/中間接続層/第2有機発光層/陰極の構成として、次の素子構成からなる有機EL素子を作製した。

ITO(130)/Ac1(40)/HT1(40)/BH:BD1(40;40:2)/ET1(20)/LiF(1.0)/Ac1(40)/HT1(40)/BH:BD1(40;40:2)/ET1(20)/LiF(1.0)/Al(150)

[0111] 厚み 0.7mm のガラス基板の上に、ITOをスパッタリングにより 130nm の厚みになるように成膜した。この基板をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行ったのち、UVオゾン洗浄を30分行い、その後このITO電極付き基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着した。

尚、予め、それぞれのモリブデン製の加熱ボートに、第1有機発光層の正孔注入層の材料及び中間接続層のアクセプター層の材料としてAc1を、第1、第2有機発光層の正孔輸送層の材料としてHT1を、第1及び第2有機発光層の有機発光媒体層のホスト材料としてBHを、青色発光材料としてBD1を、中間接続層の電子輸送材料層及び第2有機発光層の電子輸送層としてET1を、中間接続層のドナー層及び第2有機発光層の電子注入層としてLiFを、陰極材料としてAlを、それぞれ装着した。

[0112] まず、第1有機発光層の正孔注入層として機能するAc1膜を膜厚 40nm で成膜し、

次いで正孔輸送層として機能するHT1膜を膜厚40nmで成膜し、次いで第1有機発光層の有機発光媒体層として、化合物BHと化合物BD1を40:2の比となるように膜厚40nmで共蒸着した。この膜上に中間接続層の電子輸送材料層としてET1膜を膜厚20nmで成膜し、その後ドナー層としてLiF膜を膜厚1nmで蒸着し、次にアクセプター層としてAc1膜を膜厚40nmで成膜した。次に、この膜上に、第2有機発光層の正孔輸送層として機能するHT1膜を膜厚40nmで成膜し、第2有機発光層の有機発光媒体層として、化合物BHと化合物BD1を40:2の比となるように膜厚40nmで共蒸着した。さらに、この膜上に、第2有機発光層の電子輸送層として機能するET1膜を膜厚20nmで成膜し、電子注入層としてLiF膜を膜厚1nmで成膜し、最後に、この膜上に陰極として機能するAl膜を膜厚150nmで成膜し、有機EL素子を得た。

得られた有機発光素子について評価を行った。結果を表2に示す。

[0113] 実施例2

実施例1において、中間接続層の電子輸送材料層、及び第2有機発光層の電子輸送層としてET1の代わりにET2を用いたこと以外は、実施例1と同様な方法で有機EL素子を作製した。

[0114] 実施例3

実施例1において、中間接続層の電子輸送材料層、及び第2有機発光層の電子輸送層としてET1の代わりにET3を用いたこと以外は、実施例1と同様な方法で有機EL素子を作製した。

[0115] 実施例4

実施例1において、中間接続層の電子輸送材料層、及び第2有機発光層の電子輸送層としてET1の代わりにET4を用いたこと以外は、実施例1と同様な方法で有機EL素子を作製した。

[0116] 比較例1

実施例1において、中間接続層の電子輸送材料層、及び第2有機発光層の電子輸送層としてET1の代わりにAlqを用いたこと以外は、実施例1と同様な方法で有機EL素子を作製した。

[0117] 実施例5

陽極／第1有機発光層／中間接続層／第2有機発光層／陰極の構成として、次の素子構成からなる有機EL素子を作製した。

ITO(130)／Ac2(10)／HT2(50)／HT1(20)／BH:BD2(40;40:2)／ET1(20)／LiF(1.0)／Ac2(10)／HT2(50)／HT1(20)／BH:BD2(40;40:2)／ET1(20)／LiF(1.0)／Al(150)

[0118] 厚み0.7mmのガラス基板の上に、ITOをスパッタリングにより130nmの厚みになるように成膜した。この基板をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行ったのち、UVオゾン洗浄を30分行い、その後このITO電極付き基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着した。

尚、予め、それぞれのモリブデン製の加熱ポートに、第1有機発光層の正孔注入層の材料及び中間接続層のアクセプター層の材料としてAc2を、第1、第2有機発光層の正孔輸送層の材料としてHT1及びHT2を、第1及び第2有機発光層の有機発光媒体層のホスト材料としてBHを、青色発光材料としてBD2を、中間接続層の電子輸送材料層及び第2有機発光層の電子輸送層としてET1を、中間接続層のドナー層及び第2有機発光層の電子注入層としてLiFを、陰極材料としてAlを、それぞれ装着した。

[0119] まず、第1有機発光層の正孔注入層として機能するAc2膜を膜厚10nmで成膜し、次いで正孔輸送層として機能するHT2／HT1積層膜を膜厚50nm／20nmで成膜し、次いで第1有機発光層の有機発光媒体層として、化合物BHと化合物BD2を40:2の比となるように膜厚40nmで共蒸着した。この膜上に中間接続層の電子輸送材料層としてET1膜を膜厚20nmで成膜し、その後ドナー層としてLiF膜を膜厚1nmで蒸着し、次にアクセプター層としてAc2膜を膜厚10nmで成膜した。次に、この膜上に、第2有機発光層の正孔輸送層として機能するHT2／HT1積層膜を膜厚50nm／20nmで成膜し、第2有機発光層の有機発光媒体層として、化合物BHと化合物BD2を40:2の比となるように膜厚40nmで共蒸着した。さらに、この膜上に、第2有機発光層の電子輸送層として機能するET1膜を膜厚20nmで成膜し、電子注入層としてLiF膜を膜厚1nmで成膜し、最後に、この膜上に陰極として機能するAl膜を膜厚150nmで成膜し、有機EL素子を得た。

[0120] 比較例2

実施例5において、中間接続層の電子輸送材料層、及び第2有機発光層の電子輸送層としてET1の代わりにAlqを用いたこと以外は、実施例1と同様な方法で有機EL素子を作製した。

[0121] 評価結果を表1に示す。

[表1]

	電子輸送材料層	CIE-x	CIE-y	L/J (cd/A)	電圧 (V)
実施例1	ET1	0.13	0.23	16.1	9.1
実施例2	ET2	0.13	0.22	16.6	9.6
実施例3	ET3	0.13	0.22	14.4	12.4
実施例4	ET4	0.13	0.22	14.5	12.8
比較例1	Alq	0.14	0.21	13.4	13.9
実施例5	ET1	0.14	0.20	14.2	7.6
比較例2	Alq	0.15	0.19	11.8	12.2

[0122] このように、従来電子輸送材料として知られるAlqを用いた場合に比べ、非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物を用いることにより、同じような色度領域において、L/J効率が相対的に7~20%向上し、電圧も1~4V以上低減できることを確認した。

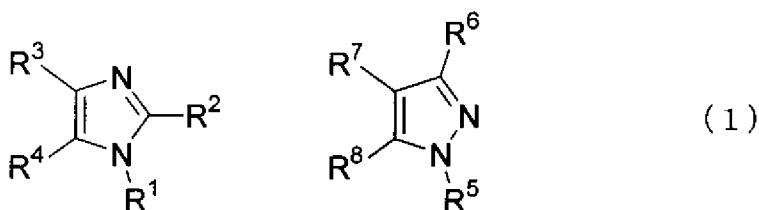
産業上の利用可能性

[0123] 本発明の有機EL素子は、青色を始めとした各色有機EL用材料として使用可能であり、各種表示素子、ディスプレイ、バックライト、照明光源、標識、看板、インテリア等の分野に適用でき、特にカラーディスプレイの表示素子として適している。

請求の範囲

- [1] 陽極と陰極の間に少なくとも2つの有機発光層が介在しており、
前記有機発光層間に、少なくとも1つの中間接続層を備え、
前記中間接続層が、陰極側から、アクセプター層、ドナー層及び非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物を含む電子輸送材料層をこの順に積層してなる有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [2] 前記含窒素複素環構造が、含窒素5員複素環構造である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [3] 前記電子輸送性材料層の非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物が、下記式(1)で表される化合物である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

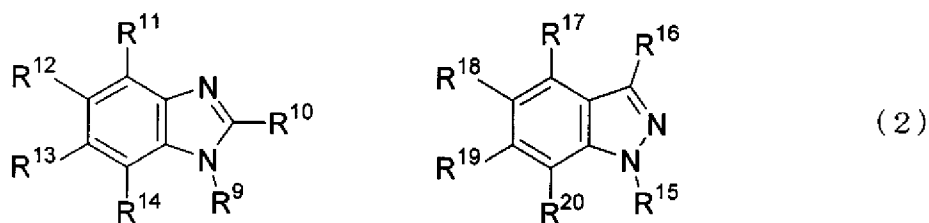
[化43]



(式中、R¹～R⁸はそれぞれ、水素原子、置換もしくは無置換の核原子数5～60のアリーール基、置換もしくは無置換の核原子数5～60のヘテロアリーール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基又はカルボキシル基であり、R¹～R⁸の隣り合う置換基の一組が互いに結合して芳香環又は複素環を形成していてもよい。)

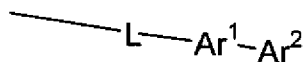
- [4] 前記電子輸送性材料層の非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物が、下記式(2)で表される化合物である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化44]



(式中、 $R^9 \sim R^{20}$ はそれぞれ、水素原子、置換もしくは無置換の核原子数5～60のアリール基、置換もしくは無置換の核原子数5～60のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基又はカルボキシル基であり、 $R^9 \sim R^{20}$ の隣り合う基が互いに結合して芳香環を形成していてもよく、 $R^9 \sim R^{20}$ の少なくとも1つは下記式で示される置換基である。

[化45]



(Lは、置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリーレン基、置換もしくは無置換の炭素数5～60のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基であり、

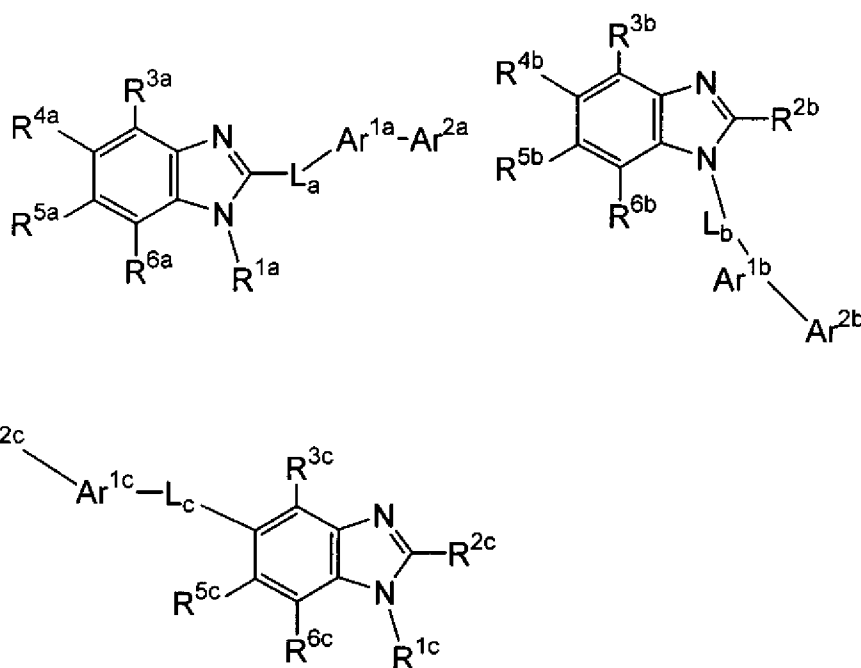
Ar^1 は、置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリーレン基、置換もしくは無置換のピリジニレン基又は置換もしくは無置換のキノリニレン基であり、

Ar^2 は、水素原子、置換もしくは無置換の核原子数5～60のアリール基、置換もしくは無置換のピリジル基、置換もしくは無置換のキノリル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～50のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1

～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基又はカルボキシル基である。))

- [5] 前記電子輸送性材料層の非錯体の含窒素複素環構造を含む化合物が、下記式で表される化合物である請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化46]



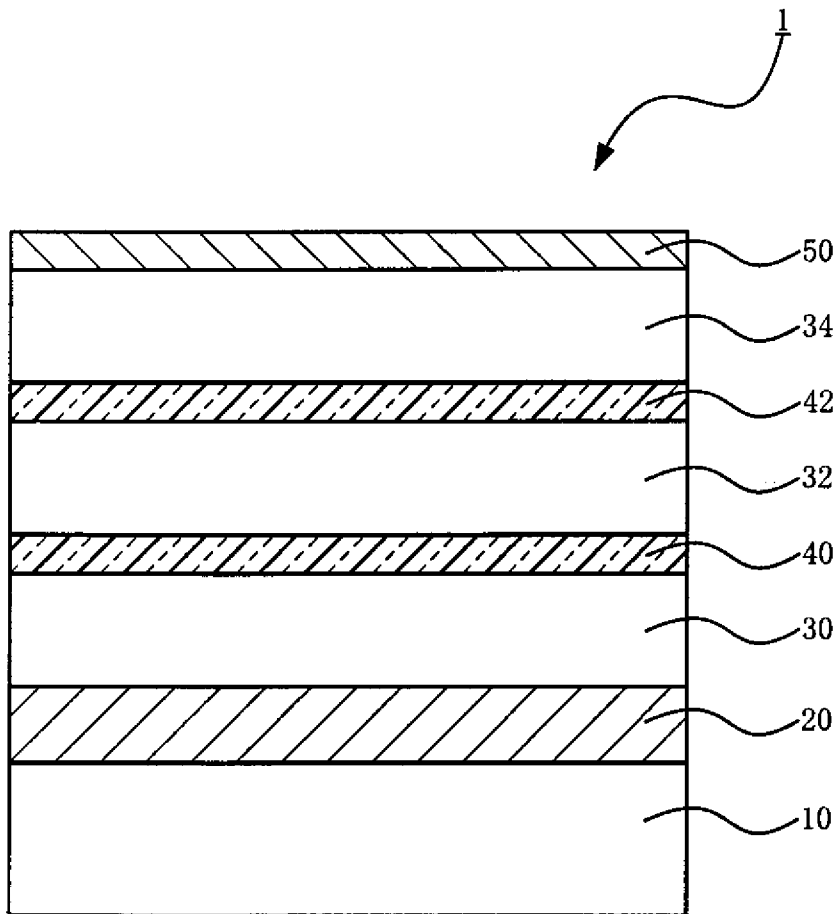
(式中、 $R^{1a} \sim R^{6c}$ 、 $L_a \sim L_c$ 、 $Ar^{1a} \sim Ar^{2c}$ は、上記式(2)における $R^9 \sim R^{20}$ 、 L 、 Ar^1 、 Ar^2 とそれぞれ同じである。

- [6] 前記ドナー層のドナーが、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体及び希土類金属の有機錯体である請求項1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [7] 前記アクセプター層のアクセプターが、電子吸引性の置換基又は電子欠乏環を有する有機化合物である請求項1～6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセン

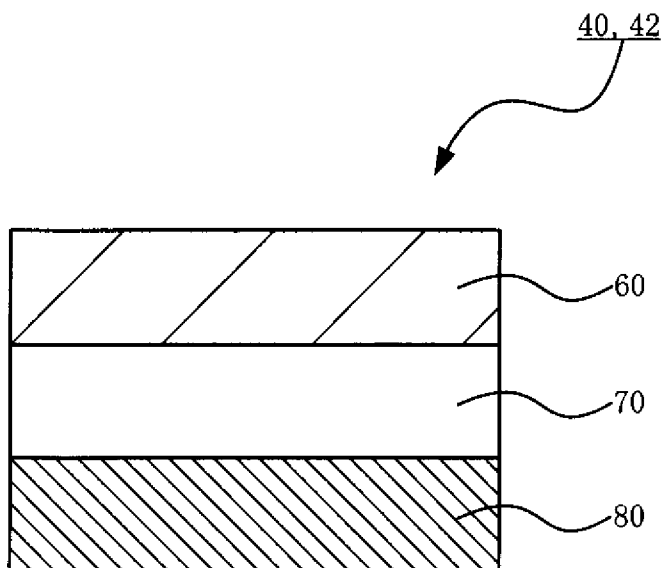
ス素子。

- [8] 前記アクセプター層のアクセプターが、キノイド誘導体、アリールボラン誘導体、チオピランジオキソイド誘導体、ナフタルイミド誘導体又はヘキサアザトリフェニレン誘導体である請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/059364

<p>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>H05B33/12(2006.01) i, C09K11/06(2006.01) i, H01L51/50(2006.01) i</i></p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>														
<p>B. FIELDS SEARCHED</p> <p>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) <i>H05B33/12, C09K11/06, H01L51/50</i></p> <p>Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched</p> <table style="width:100%; border:none;"> <tr> <td style="width:33%;"><i>Jitsuyo Shinan Koho</i></td> <td style="width:33%;"><i>1922-1996</i></td> <td style="width:33%;"><i>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</i></td> <td style="width:33%;"><i>1996-2007</i></td> </tr> <tr> <td><i>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</i></td> <td><i>1971-2007</i></td> <td><i>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</i></td> <td><i>1994-2007</i></td> </tr> </table> <p>Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)</p>			<i>Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1922-1996</i>	<i>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</i>	<i>1996-2007</i>	<i>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1971-2007</i>	<i>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1994-2007</i>				
<i>Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1922-1996</i>	<i>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</i>	<i>1996-2007</i>											
<i>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1971-2007</i>	<i>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1994-2007</i>											
<p>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</p> <table border="1" style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="width:10%;">Category*</th> <th style="width:70%;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="width:20%;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td align="center">Y</td> <td>JP 2006-66380 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 09 March, 2006 (09.03.06), Claims 1, 2, 11; Par. Nos. [0001], [0033] to [0040]; Figs. 1, 2 (Family: none)</td> <td align="center">1-8</td> </tr> <tr> <td align="center">Y</td> <td>JP 2006-49396 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 16 February, 2006 (16.02.06), Claims 1, 3, 10; Par. Nos. [0001], [0031] to [0038]; Figs. 1, 2 (Family: none)</td> <td align="center">1-8</td> </tr> <tr> <td align="center">Y</td> <td>WO 2005/097756 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 20 October, 2005 (20.10.05), Full text (Family: none)</td> <td align="center">1-8</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	Y	JP 2006-66380 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 09 March, 2006 (09.03.06), Claims 1, 2, 11; Par. Nos. [0001], [0033] to [0040]; Figs. 1, 2 (Family: none)	1-8	Y	JP 2006-49396 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 16 February, 2006 (16.02.06), Claims 1, 3, 10; Par. Nos. [0001], [0031] to [0038]; Figs. 1, 2 (Family: none)	1-8	Y	WO 2005/097756 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 20 October, 2005 (20.10.05), Full text (Family: none)	1-8
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.												
Y	JP 2006-66380 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 09 March, 2006 (09.03.06), Claims 1, 2, 11; Par. Nos. [0001], [0033] to [0040]; Figs. 1, 2 (Family: none)	1-8												
Y	JP 2006-49396 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 16 February, 2006 (16.02.06), Claims 1, 3, 10; Par. Nos. [0001], [0031] to [0038]; Figs. 1, 2 (Family: none)	1-8												
Y	WO 2005/097756 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 20 October, 2005 (20.10.05), Full text (Family: none)	1-8												
<p><input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.</p>														
<p>* Special categories of cited documents:</p> <table style="width:100%; border:none;"> <tr> <td style="width:50%; vertical-align: top;"> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> </td> <td style="width:50%; vertical-align: top;"> <p>“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>“&” document member of the same patent family</p> </td> </tr> </table>			<p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>										
<p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>													
<p>Date of the actual completion of the international search 30 July, 2007 (30.07.07)</p>		<p>Date of mailing of the international search report 07 August, 2007 (07.08.07)</p>												
<p>Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office</p>		<p>Authorized officer</p>												
<p>Facsimile No.</p>		<p>Telephone No.</p>												

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/059364

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2004/080975 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 23 September, 2004 (23.09.04), Full text & EP 1602648 A1	1-8
Y	WO 2003/060956 A1 (LG CHEM, LTD.), 24 July, 2003 (24.07.03), Full text & JP 2005-515233 A	1-8
A	WO 2004/095892 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 04 November, 2004 (04.11.04), Full text & EP 1633169 A1	1-8
A	JP 2003-45676 A (Junji KIDO, International Manufacturing and Engineering Services Co., Ltd.), 14 February, 2003 (14.02.03), Full text; Fig. 3 (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H05B33/12(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H05B33/12, C09K11/06, H01L51/50		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2007年 日本国実用新案登録公報 1996-2007年 日本国登録実用新案公報 1994-2007年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 2 0 0 6 - 6 6 3 8 0 A (三洋電機株式会社) 2 0 0 6 . 0 3 . 0 9 , 請求項 1 , 2 , 1 1 , 段落【0001】 , 【0033】 - 【0040】 , 図 1 , 図 2 (ファミリーなし)	1 - 8
Y	J P 2 0 0 6 - 4 9 3 9 6 A (三洋電機株式会社) 2 0 0 6 . 0 2 . 1 6 , 請求項 1 , 3 , 1 0 , 段落【0001】 , 【0031】 - 【0038】 , 図 1 , 図 2 (ファミリーなし)	1 - 8
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列举されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 30.07.2007	国際調査報告の発送日 07.08.2007	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 池田 博一 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	20 3491

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	WO 2005/097756 A1 (出光興産株式会社) 2005. 10.20, 全文 (ファミリーなし)	1-8
Y	WO 2004/080975 A1 (出光興産株式会社) 2004. 09.23, 全文 & EP 1602648 A1	1-8
Y	WO 2003/060956 A1 (LG CHEM, LTD.) 2 003.07.24, 全文 & JP 2005-515233 A	1-8
A	WO 2004/095892 A1 (出光興産株式会社) 2004. 11.04, 全文 & EP 1633169 A1	1-8
A	JP 2003-45676 A (城戸淳二, 株式会社アイメス) 2 003.02.14, 全文, 図3 (ファミリーなし)	1-8