

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2010年8月12日(12.08.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/090077 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) C07D 471/04 (2006.01)
C07D 405/14 (2006.01) C07D 519/00 (2006.01)
C07D 409/14 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)
C07D 413/14 (2006.01) H05B 33/26 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/050692
- (22) 国際出願日: 2010年1月21日(21.01.2010)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2009-025871 2009年2月6日(06.02.2009) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタホールディングス株式会社(Konica Minolta Holdings, Inc.) [JP/JP]; 〒1000005 東京都千代田区丸の内一丁目6番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 片倉 利恵(KATAKURA Rie) [JP/JP]; 〒1918511 東京都日野市さくら町1番地コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 加藤 栄作(KATOHI Eisaku) [JP/JP]; 〒1918511 東京都日野市さくら町1番地コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). ▲高▼ 秀雄(TAKA Hideo) [JP/JP]; 〒1918511 東京都日野市

さくら町1番地コニカミノルタテクノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP).

- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, 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(条約第21条(3))



WO 2010/090077 A1

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, AND ILLUMINATION DEVICE AND DISPLAY DEVICE EACH COMPRISING THE ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置

(57) Abstract: Disclosed is an organic electroluminescent element which has high luminous efficiency, a low driving voltage, excellent heat resistance, excellent raw stock storability and a long service life.

(57) 要約: 高発光効率、低駆動電圧であり、耐熱性や生保存性に優れ、且つ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

明 細 書

発明の名称：

有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置

技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置に関する。

背景技術

[0002] 従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（ELD）がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子ともいう）が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。

[0003] 一方、有機EL素子は、発光する化合物を含有する発光層を陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・燐光）を利用して発光する素子であり、数V～数十V程度の電圧で発光が可能であり、更に自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

[0004] 実用化に向けた有機EL素子の開発としては、M. A. Baldo et al., nature、395巻、151～154ページ（1998年）により、プリンストン大より、励起三重項からのリン光発光を用いる有機EL素子の報告がされて以来、M. A. Baldo et al., nature、403巻、17号、750～753頁（2000年）、米国特許第6,097,147号明細書により、室温で燐光を示す材料の研究が活発にな

ってきている。

- [0005] 更に、最近発見されたリン光発光を利用する有機EL素子では、以前の蛍光発光を利用する素子に比べ原理的に約4倍の発光効率を実現可能であることから、その材料開発を初めとし、発光素子の層構成や電極の研究開発が世界中で行われている。
- [0006] 例えば、S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304頁(2001年)には、多くの化合物がイリジウム錯体系等重金属錯体を中心に合成検討がなされている。
- [0007] このように大変ポテンシャルの高い方式であるが、リン光発光を利用する有機ELデバイスにおいては、蛍光発光を利用する有機ELデバイスとは大きく異なり、発光中心の位置をコントロールする方法、とりわけ発光層の内部で再結合を行い、いかに発光を安定に行わせることができるかが、素子の効率・寿命を捕らえる上で重要な技術的な課題となっている。
- [0008] そこで近年、発光層に隣接する形で、(発光層の陽極側に位置する)正孔輸送層と(発光層の陰極側に位置する)電子輸送層を備えた多層積層型の素子が良く知られている(例えば、特許文献1参照)。
- [0009] 特に、青色リン光発光を利用するにあたっては、青色リン光発光材料自身が高T1であるため、周辺材料の開発と精密な発光中心の制御が強く求められている。
- [0010] 近年、リン光発光材料を用いて有機EL素子の発光層においては、ホスト材料としてジベンゾチオフェン誘導体を用いる技術(例えば、特許文献1参照。)や、正孔注入成分及び/または発光成分として、ジベンゾチオフェン誘導体やジベンゾフラン誘導体を用いる技術(例えば、特許文献2参照。)などが開示されている。
- [0011] しかしながら、高発光効率、低駆動電圧であり、耐熱性、生保存性に優れ、なおかつ、長寿命である有機EL素子を提供するという観点からは、いまだに不十分であり、更なる解決方法が模索されている。
- [0012] 一方で、大面積化、低コスト化、高生産性に対する要求から、湿式法(ウ

エットプロセス等ともいう)に対する期待が大きく、真空プロセスでの成膜に比して低温で成膜可能であるため、下層の有機層のダメージを低減でき、発光効率や素子寿命の改善の面からも大きな期待が寄せられている。

- [0013] しかしながら、青色リン光発光を利用する有機EL素子において、ウエット成膜を実現するためには、とりわけ電子輸送材料が課題となり、実用上の観点から、現在知られている電子輸送材料では、溶液安定性、駆動電圧等の点で、まだ不十分であり、更なる改良技術が不可欠であることが判ってきた。

先行技術文献

特許文献

- [0014] 特許文献1：特開2007-126403号公報
特許文献2：特開2005-112765号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0015] 本発明の目的は、高発光効率、低駆動電圧であり、耐熱性、生保存性に優れ、なおかつ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置を提供することである。

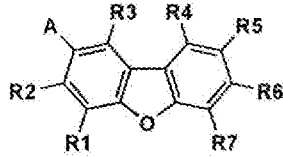
課題を解決するための手段

- [0016] 本発明の上記目的は下記の構成により達成された。
[0017] 1. 陽極と陰極の間に発光層を含む複数の構成層が挟持されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、

該構成層として、下記一般式(1)で表される化合物を少なくとも一種含有する電子輸送層を有し、該発光層の少なくとも1つがリン光発光性の有機金属錯体を含有し、かつ、該陰極または該陰極に接する構成層中に、周期表第1族または第2族に属する元素の金属または金属化合物を含有し、該元素の金属イオン(M^{n+}) / 金属(M)系の標準電極電位が $-3V$ vs. SHEよりも大きいことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0018] [化1]

一般式(1)

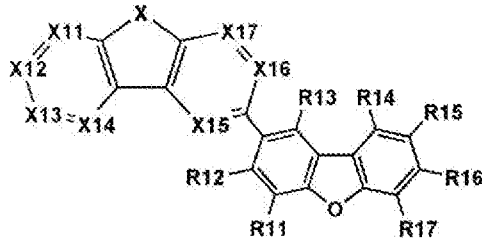


[0019] [式中、R 1 ~ R 7 は、各々水素原子または置換基を表す。A は、フェニル基または芳香族複素環基を表す。但し、A は部分構造として、少なくとも 1 つのカルバゾール環、アザカルバゾール環、ジベンゾフラン環またはジベンゾチオフェン環を含む。]

2. 前記一般式 (1) で表される化合物が下記一般式 (2) で表される化合物であることを特徴とする前記 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0020] [化2]

一般式(2)



[0021] [式中、R 1 1 ~ R 1 7 は、各々水素原子または置換基を表し、X は、-O-、-S-、または-N (R 1 0) -を表し、R 1 0 は水素原子または置換基を表す。X 1 1 ~ X 1 7 は-C (R 1 8) =または-N=を表し、R 1 8 は水素原子または置換基を表す。-C (R 1 8) =が複数存在する場合には R 1 8 は同じでも異なってもよい。但し、R 1 0 ~ R 1 8 の少なくとも 1 つは置換基を表す。]

3. 前記一般式 (2) の X が、-N (R 1 0) -を表し、R 1 1 ~ R 1 4

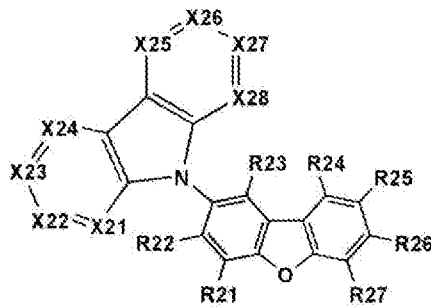
、R 1 6、R 1 7が各々水素原子を表し、且つ、X 1 1、X 1 2、X 1 4～X 1 7が、各々—C H=または—N=を表すことを特徴とする前記 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0022] 4. 前記一般式 (2) の X が、—O—または—S—を表し、R 1 1～R 1 4、R 1 6、R 1 7が、各々水素原子であり、且つ、X 1 1、X 1 2、X 1 4～X 1 7が、各々—C H=を表すことを特徴とする前記 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0023] 5. 前記一般式 (1) で表される化合物が下記一般式 (3) で表される化合物であることを特徴とする前記 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0024] [化3]

一般式(3)



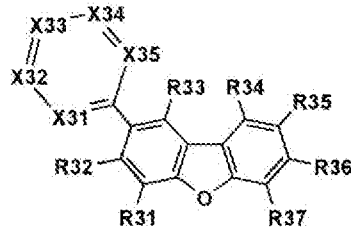
[0025] [式中、R 2 1～R 2 7は、各々水素原子または置換基を表す。X 2 1～X 2 8は、各々—C (R 2 8) =または—N=を表し、R 2 8は水素原子または置換基を表す。—C (R 2 8) =が複数存在する場合にはR 2 8は同じでも異なってもよい。但し、R 2 1～R 2 8の少なくとも1つは置換基を表す。]

6. 前記一般式 (3) のR 2 1～R 2 4、R 2 6、R 2 7が、各々水素原子を表し、X 2 1、X 2 2、X 2 4、X 2 5、X 2 7、X 2 8が、各々—C H=または—N=を表すことを特徴とする前記 5 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0026] 7. 前記一般式(1)で表される化合物が下記一般式(4)で表される化合物であることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0027] [化4]

一般式(4)



[0028] [式中、R31～R37は、各々水素原子または置換基を表す。X31～X35は、各々-C(R38)=または-N=を表し、R38は水素原子または置換基を表す。但し、X31～X35の少なくとも1つは、R38が置換基を表す-C(R38)=である。-C(R38)=が複数存在する場合にはR38は同じでも異なってもよい。]

8. 前記一般式(4)のR31～R34、R36、R37が、各々水素原子を表し、X33が、-CH=または-N=を表すことを特徴とする前記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

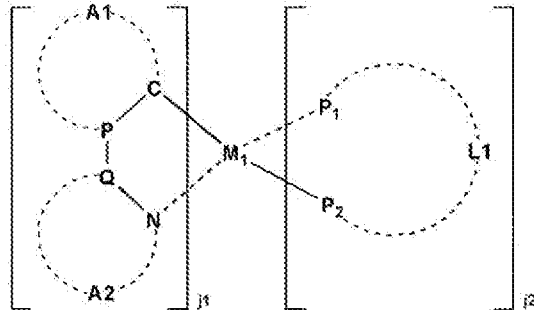
[0029] 9. 前記一般式(1)～(4)のいずれかで表される化合物が、ピリジン環または該ピリジン環を含む縮合芳香族複素環を部分構造として少なくとも1つ有することを特徴とする前記1～8のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0030] 10. 前記元素が、ナトリウム、カリウムまたはセシウムを表すことを特徴とする前記1～9のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0031] 11. 前記リン光発光性の有機金属錯体の少なくとも1つが、下記一般式(5)で表される化合物であることを特徴とする前記1～10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0032] [化5]

一般式(5)

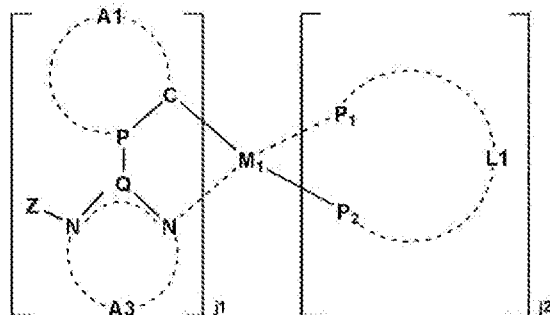


[0033] [式中、P、Qは、各々炭素原子または窒素原子を表し、A1はP-Cと共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A2はQ-Nと共に芳香族複素環を形成する原子群を表す。P₁-L1-P₂は2座の配位子を表し、P₁、P₂は各々独立に炭素原子、窒素原子、または酸素原子を表す。L1はP₁、P₂と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1～3の整数を表し、j2は0～2の整数を表すが、j1+j2は2または3である。M₁は元素周期表における8族～10族の金属元素を表す。]

12. 前記一般式(5)で表される化合物が下記一般式(6)で表される化合物であることを特徴とする前記11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0034] [化6]

一般式(6)

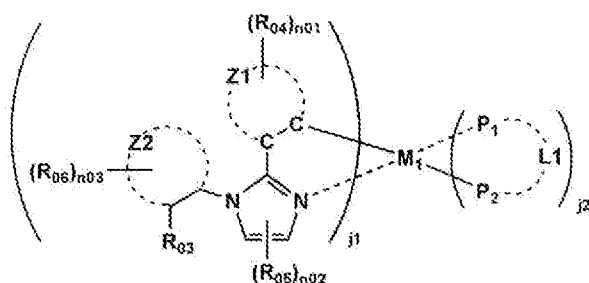


[0035] [式中、Zは、炭化水素環基または複素環基を表す。P、Qは、各々炭素原子または窒素原子を表し、A1はP-Cと共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A3は-C(R₀₁)=C(R₀₂)-、-N=C(R₀₂)-、-C(R₀₁)=N-または-N=N-を表し、R₀₁、R₀₂は、各々水素原子または置換基を表す。P₁-L₁-P₂は2座の配位子を表し、P₁、P₂は各々独立に炭素原子、窒素原子、または酸素原子を表す。L₁はP₁、P₂と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j₁は1~3の整数を表し、j₂は0~2の整数を表すが、j₁+j₂は2または3である。M₁は元素周期表における8族~10族の遷移金属元素を表す。]

13. 前記一般式(6)で表される化合物が下記一般式(7)で表される化合物であることを特徴とする前記12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0036] [化7]

一般式(7)



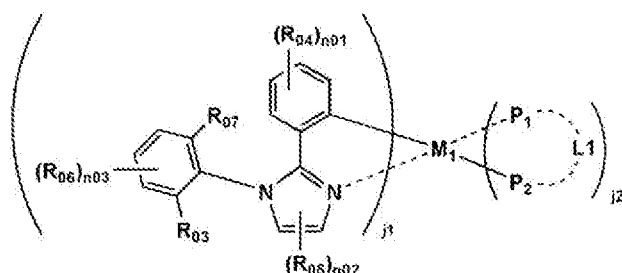
[0037] [式中、R₀₃は置換基を表し、R₀₄は水素原子または置換基を表し、複数のR₀₄は互いに結合して環を形成してもよい。n₀₁は1~4の整数を表す。R₀₅は水素原子または置換基を表し、複数のR₀₅は互いに結合して環を形成してもよい。n₀₂は1~2の整数を表す。R₀₆は水素原子または置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。n₀₃は1~4の整数を表す。Z₁はC-Cと共に6員の芳香族炭化水素環もしくは、5員または6員の芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。Z₂は炭化水素環または複

素環を形成するのに必要な原子群を表す。P₁-L₁-P₂は2座の配位子を表し、P₁、P₂は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L₁はP₁、P₂と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j₁は1~3の整数を表し、j₂は0~2の整数を表すが、j₁+j₂は2または3である。M₁は元素周期表における8族~10族の遷移金属元素を表す。R₀₃とR₀₆、R₀₄とR₀₆及びR₀₅とR₀₆は互いに結合して環を形成していてもよい。]

14. 前記一般式(7)で表される化合物が下記一般式(8)で表される化合物であることを特徴とする前記13に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0038] [化8]

一般式(8)



[0039] [式中、R₀₃は置換基を表し、R₀₄は水素原子または置換基を表し、複数のR₀₄は互いに結合して環を形成してもよい。n₀₁は1~4の整数を表す。R₀₅は水素原子または置換基を表し、複数のR₀₅は互いに結合して環を形成してもよい。n₀₂は1~2の整数を表す。R₀₆は水素原子または置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。n₀₃は1~3の整数を表す。R₀₇は置換基または単結合手を表す。P₁-L₁-P₂は2座の配位子を表し、P₁、P₂は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L₁はP₁、P₂と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j₁は1~3の整数を表し、j₂は0~2の整数を表すが、j₁+j₂は2または3である。M₁は元素周期表における8族~10族の遷移金属元素を表す。]

15. 前記M₁がイリジウムを表すことを特徴とする前記11～14のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0040] 16. 前記電子輸送層と発光層とを含む少なくとも2層の有機層が湿式法で形成されたことを特徴とする前記1～15のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0041] 17. 白色に発光することを特徴とする前記1～16のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0042] 18. 前記1～16のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

[0043] 19. 前記1～16のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

発明の効果

[0044] 本発明により、高発光効率、低駆動電圧であり、耐熱性や生保存性に優れ、且つ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することができた。

[0045] 併せて、該有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた表示装置及び照明装置を提供することができた。

図面の簡単な説明

[0046] [図1]有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

[図2]表示部Aの模式図である。

[図3]画素の模式図である。

[図4]パッシブマトリクス方式フルカラー表示装置の模式図である。

[図5]照明装置の概略図である。

[図6]照明装置の模式図である。

[図7]有機ELフルカラー表示装置の概略構成図を示す。

発明を実施するための形態

[0047] 本発明の有機EL素子においては、請求項1～17のいずれか1項に記載の構成を有することにより、高発光効率、低駆動電圧であり、耐熱性や生保

存性に優れ、且つ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することができた。

[0048] 併せて、該有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた表示装置及び照明装置を提供することができた。

[0049] 以下、本発明の有機EL素子の各構成要素の詳細について、順次説明する。

[0050] 本発明者らは前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、一般式（1）で表される化合物を有機エレクトロルミネッセンス素子の電子輸送層に用いることにより、高効率、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子が得られることを見出した。

[0051] また、ジベンゾフラン環は平面性が高く、コア骨格に用いることでガラス転移温度（ T_g ）の高い材料を提供することが可能となった。ジベンゾフランと類似骨格の芳香環にカルバゾール環やフルオレン環があるが、カルバゾール環9位のNH部位やフルオレン環9位の CH_2 部位は反応活性が高く不安定である。そのため9位を置換する必要があるが、置換基を導入することによって平面性が崩れてしまう。

[0052] 一方、ジベンゾフラン環では上記のような活性の高さがないため、カルバゾール環9位のNH部位やフルオレン環9位の CH_2 部位と同様の位置に置換基を導入する必要がなく平面性を維持することが可能である。その結果、密な薄膜を形成することが可能となり、膜の安定性が向上し保存性などが改良される。

[0053] また、元素周期表の第2周期に属する酸素原子は、第3周期に属する硫黄原子よりも不安定な荷電状態をとるため、酸素原子を構成原子として含む本発明に係る一般式（1）で表される化合物のようなジベンゾフラン誘導体は電子を渡しやすく、結果キャリアが移動しやすくなり低駆動電圧を達成できることが分かった。

[0054] 更に、一般式（1）における置換位置Aは、共役長を伸ばさず、即ち、高い3重項エネルギー（ T_1 ）を維持したまま他の骨格と連結することが可能

な位置であり、更にジベンゾフラン環の4位よりも合成上置換基の導入が容易なため、量産性に適している。

[0055] また、電子注入材料としては仕事関数の小さいフッ化リチウムに代表されるアルカリ金属やアルカリ土類金属がよく知られているが、本発明の電子輸送材料との組み合わせについて本発明者らが詳細に検討したところ、周期表第1族または第2族に属する元素であって、 M^{n+}/M 系の標準電極電位が -3 V vs. SHE よりも大きい元素の金属または金属化合物（錯体や塩を含む）を併用することによって、高効率でありながら同時に非常に低い電圧で有機EL素子を駆動させることが可能となった。

[0056] これは、酸化還元電位が小さい元素に比較して大きい元素は電子を受け取りやすいため、還元され金属の状態になりやすく、その結果、金属を通して陰極から電子輸送層へ電子が輸送されやすくなり、本発明のジベンゾフラン誘導体と電子注入材料を組み合わせるにより高効率、低電圧の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することが可能となった。

[0057] 尚、有機EL素子を構成する、陽極、陰極及び該陽極と該陰極との間に挟持される構成層（正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層等の有機層等）については後に詳細に説明する。

[0058] 以下、一般式（1）で表される化合物について説明する。

[0059] 《一般式（1）で表される化合物》

一般式（1）において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される置換基の例としてはアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等）、シクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（例えば、ビニル基、アリル基等）、アルキニル基（例えば、エチニル基、プロパルギル基等）、芳香族炭化水素基（芳香族炭化水素環基、芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、ア

セナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ビフェニル基等)、芳香族複素環基(例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基(例えば、1, 2, 4-トリアゾール-1-イル基、1, 2, 3-トリアゾール-1-イル基等)、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基(前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す)、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホリル基、オキサゾリジル基等)、アルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等)、シクロアルコキシ基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホ

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

ルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリアルスルホニル基またはヘテロアリアルスルホニル基(例えば、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)、ホスホノ基等が挙げられる。

[0060] また、これらの置換基は上記の置換基によって更に置換されていてもよい。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

[0061] 一般式(1)において、Aで表されるフェニル基は、部分構造として、少なくとも1つのカルバゾール環、アザカルバゾール環、ジベンゾフラン環またはジベンゾチオフェン環を含む。

[0062] ここで、アザカルバゾール環とは、前記カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が1つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

[0063] また、該部分構造は、無置換でも置換基を有していてもよく、該置換基は、一般式(1)において、R1~R7で各々表される置換基と同義である。

[0064] 一般式(1)において、Aで表される芳香族複素環基としては、例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基(例えば、1,2,4-トリアゾール-1-イル基、1,2,3-トリアゾール-1-イル基等)、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカル

バゾリル基（前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でも更に、一般式（1）において、R₁～R₇で各々表される置換基を有していてもよい。

[0065] 尚、該芳香族複素環基は、部分構造として、少なくとも1つのカルバゾール環、アザカルバゾール環、ジベンゾフラン環またはジベンゾチオフェン環を含む。

[0066] 本発明に係る一般式（1）で表される化合物の更に好ましい態様としては、上記一般式（2）、（3）または（4）のいずれかで表される化合物が挙げられる。

[0067] 《一般式（2）で表される化合物》

一般式（2）において、R₁₁～R₁₇で各々表される置換基は、一般式（1）において、R₁～R₇で各々表される置換基と同義である。

[0068] 一般式（2）のXの-N（R₁₀）-において、R₁₀で表される置換基は、一般式（1）において、R₁～R₇で各々表される置換基と同義である。

[0069] 一般式（2）のX₁₁～X₁₇において、-C（R₁₈）=のR₁₈で表される置換基は、一般式（1）において、R₁～R₇で各々表される置換基と同義である。

[0070] また、一般式（2）で表される化合物においても、下記に示す2種の好ましい態様（a）、（b）が挙げられる。

[0071] （a）一般式（2）のXが-N（R₁₀）-を表し、R₁₁～R₁₄、R₁₆、R₁₇が各々水素原子を表し、且つ、X₁₁、X₁₂、X₁₄～X₁₇が、各々-CH=または-N=を表す場合、

（b）一般式（2）のXが-O-または-S-を表し、R₁₁～R₁₄、R₁₆、R₁₇が各々水素原子であり、且つ、X₁₁、X₁₂、X₁₄～X₁₇が、各々-CH=を表す場合、

である。

[0072] 《一般式（3）で表される化合物》

一般式（3）において、R₂₁～R₂₇で各々表される置換基は、一般式（1）において、R₁～R₇で各々表される置換基と同義である。

[0073] 一般式（3）のX₂₁～X₂₈で各々表される—C（R₂₈）=において、R₂₈で表される置換基は、一般式（1）において、R₁～R₇で各々表される置換基と同義である。

[0074] また、一般式（3）で表される化合物においても、好ましい態様としては、下記に示すような態様（c）が挙げられる。

[0075] （c）一般式（3）のR₂₁～R₂₄、R₂₆、R₂₇が、各々水素原子を表し、X₂₁、X₂₂、X₂₄、X₂₅、X₂₇、X₂₈が、各々—CH=または—N=を表す場合、
である。

[0076] 《一般式（4）で表される化合物》

一般式（4）において、R₃₁～R₃₇で各々表される置換基は、一般式（1）において、R₁～R₇で各々表される置換基と同義である。

[0077] 一般式（4）のX₃₁～X₃₅で各々表される—C（R₃₈）=において、R₃₈で表される置換基は、一般式（1）において、R₁～R₇で各々表される置換基と同義である。

[0078] また、一般式（4）で表される化合物においても、好ましい態様としては、下記に示す態様（d）が挙げられる。

[0079] （d）一般式（4）のR₃₁～R₃₄、R₃₆、R₃₇が、各々水素原子を表し、X₃₃が、—CH=または—N=を表す場合、
である。

[0080] 以下、本発明に係る一般式（1）、（2）、（3）または（4）のいずれかで表される化合物の更に好ましい態様について以下に説明する。

[0081] 《好ましい部分構造》

また、本発明に係る一般式（1）、（2）、（3）または（4）のいずれ

かで表される化合物の好ましい態様としては、ピリジン環または該ピリジン環を含む縮合芳香族複素環を部分構造として少なくとも1つ有することが好ましい。

[0082] ここで、ピリジン環を含む縮合芳香族複素環とは、例えば β -カルボリンのように、縮合環を構成する環の少なくとも1つがピリジン環であるような縮合芳香族複素環を指す。

[0083] 《 T_g (ガラス転移温度 $^{\circ}\text{C}$)》

本発明に係る一般式(1)、(2)、(3)または(4)のいずれかで表される化合物の T_g (ガラス転移温度 $^{\circ}\text{C}$)を上げるためにはナフタレン環やアントラセン環など縮合環を化合物内に導入することが有効である。

[0084] しかし、縮合系の芳香族炭化水素環は T_1 (三重項励起状態、励起三重項状態を示す)が小さく、特に青色燐光発光性ドーパントと同時に用いる場合には適していない。

[0085] そこで、 T_1 を下げずに T_g を向上させる手段として、カルバゾール環やジベンゾフラン環などの芳香族複素縮合環を導入することが好ましい。

[0086] 《好ましく含有される構成層及び該構成層の作製方法》

本発明に係る一般式(1)、(2)、(3)または(4)のいずれかで表される化合物は少なくとも電子輸送層に含有されるが、電子輸送層以外の層、例えば正孔輸送層や発光層に含有されていてもよい。

[0087] 本発明に係る一般式(1)、(2)、(3)または(4)のいずれかで表される化合物を含有する層の作製方法としては、湿式法(ウェットプロセスともいう)、蒸着法等があるが、均質な膜が得られやすく、且つピンホールが生成しにくい等の点から、湿式法が好ましく用いられる。

[0088] ここで、湿式法としては、スピコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法等があるが、精密な薄膜が形成可能で、且つ高生産性の点から、ダイコート法、ロールコート法、インクジェット法、スプレーコート法などのロール・ツー・ロール方式適性の高い方法が好ましい。

また、層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。

[0089] また、本発明に係る一般式（１）、（２）、（３）または（４）のいずれかで表される化合物を用いて塗布法（分散法も含む）により構成層を形成する場合、用いる溶剤に制限はないが、前記化合物の T_g と溶剤の沸点 T_b の関係が、下記式（１）を満足することが好ましい。

[0090] 式（１）

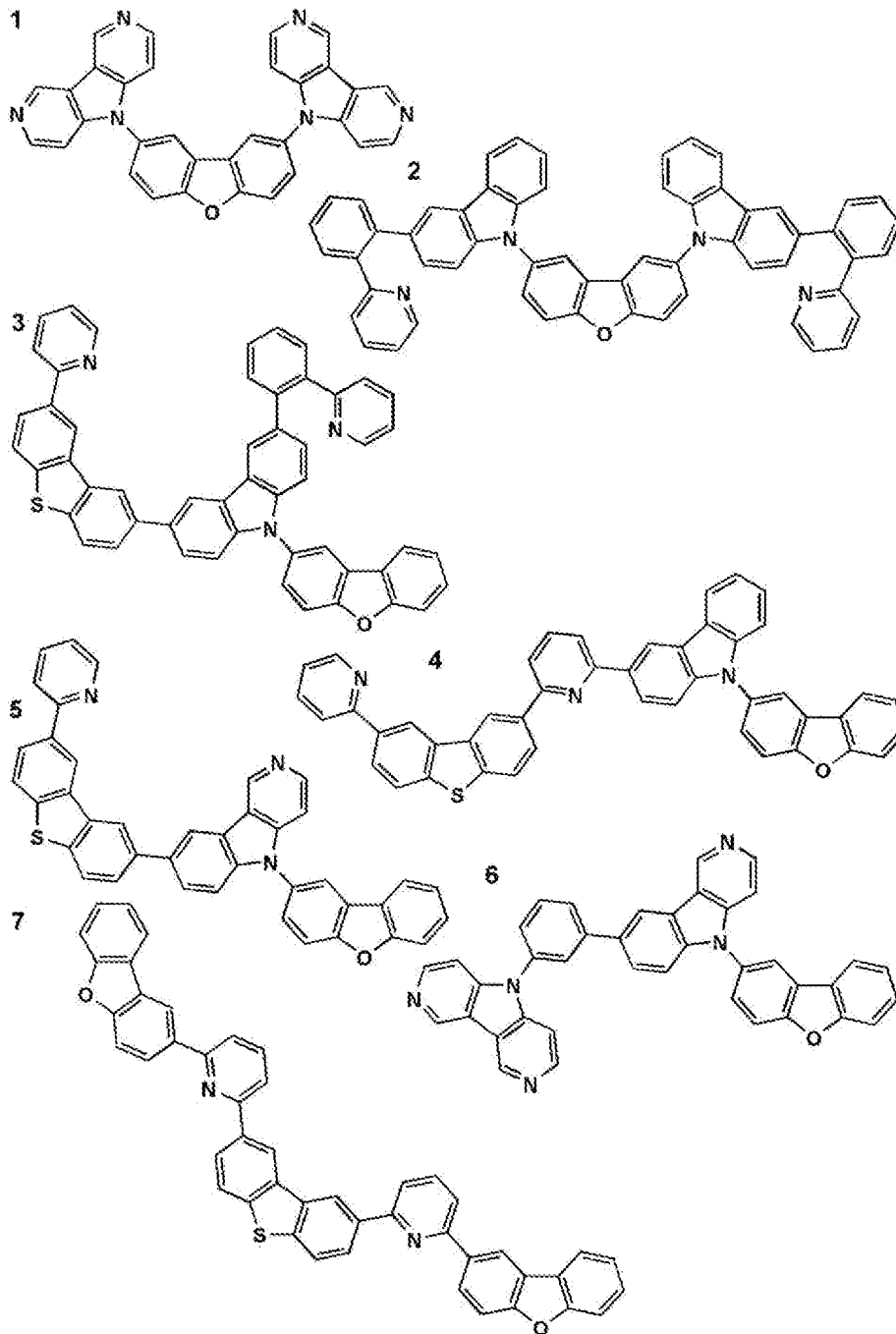
$$T_g + 10^\circ\text{C} \geq T_b$$

また、本発明の有機EL素子を構成する有機層の３層以上が塗布で作製されることが好ましく、更には、陰極も銀ナノ粒子などを用い塗布で形成されてもよい。

[0091] 以下、本発明に係る一般式（１）、（２）、（３）または（４）のいずれかで表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

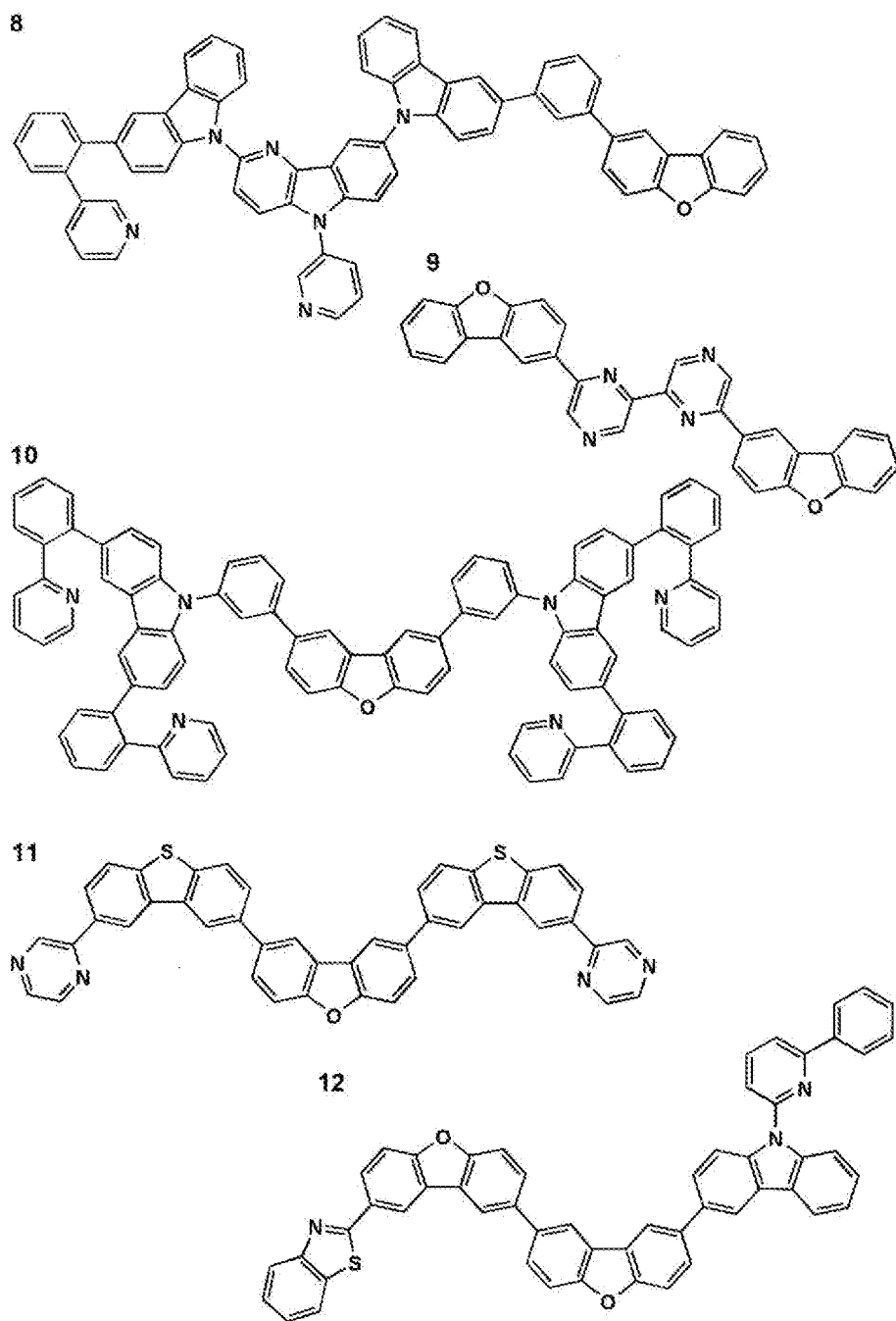
[0092]

[化9]



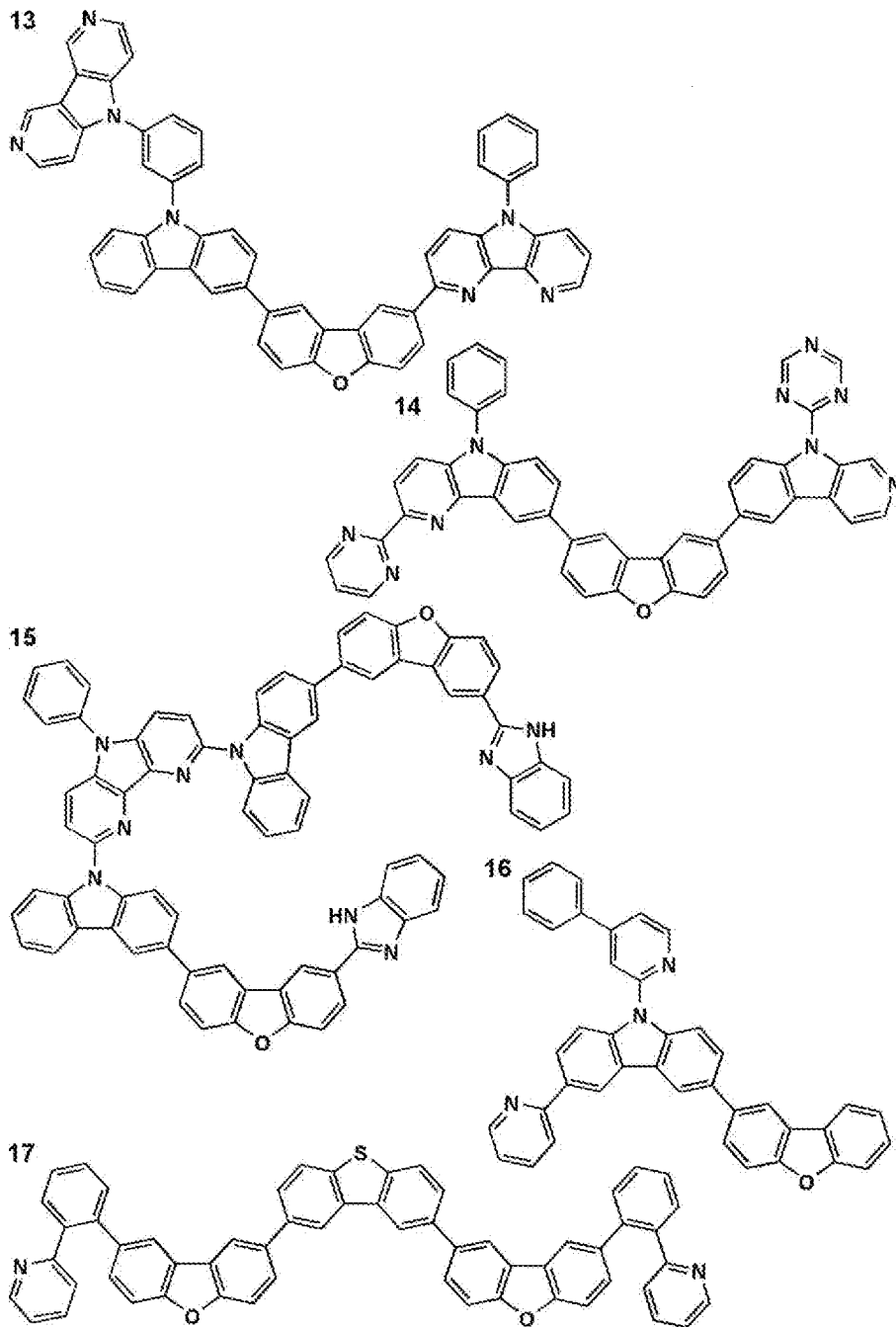
[0093]

[化10]



[0094]

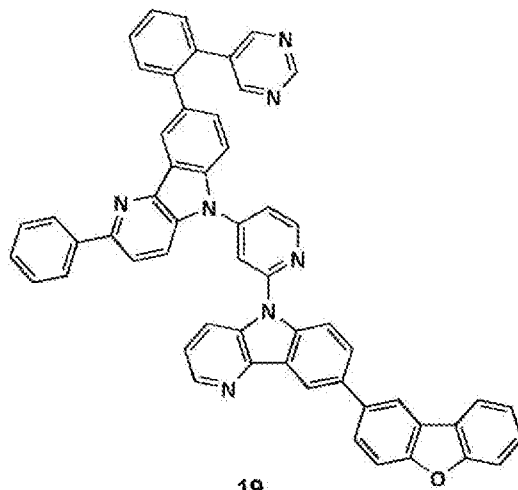
[化11]



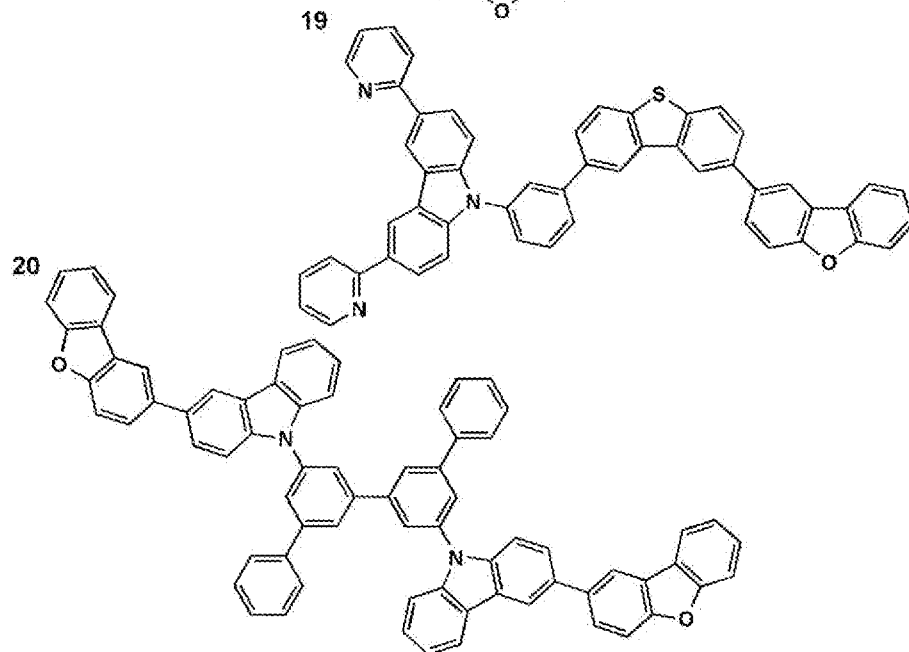
[0095]

[化12]

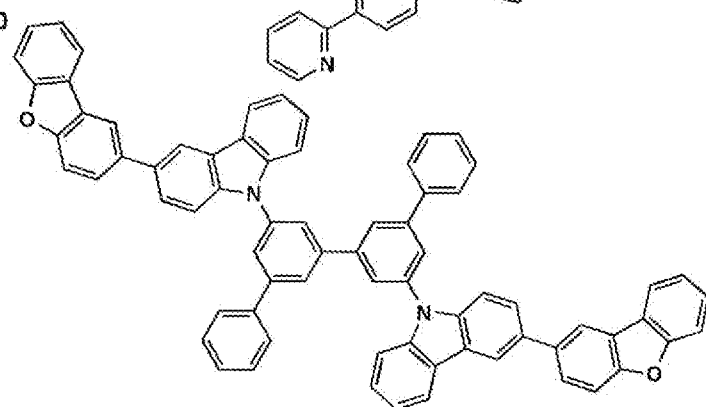
18



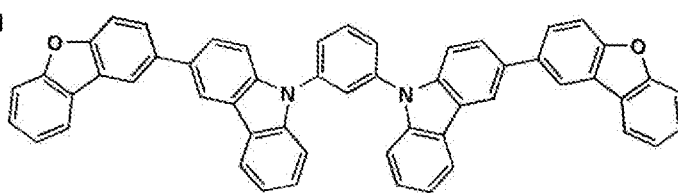
19



20

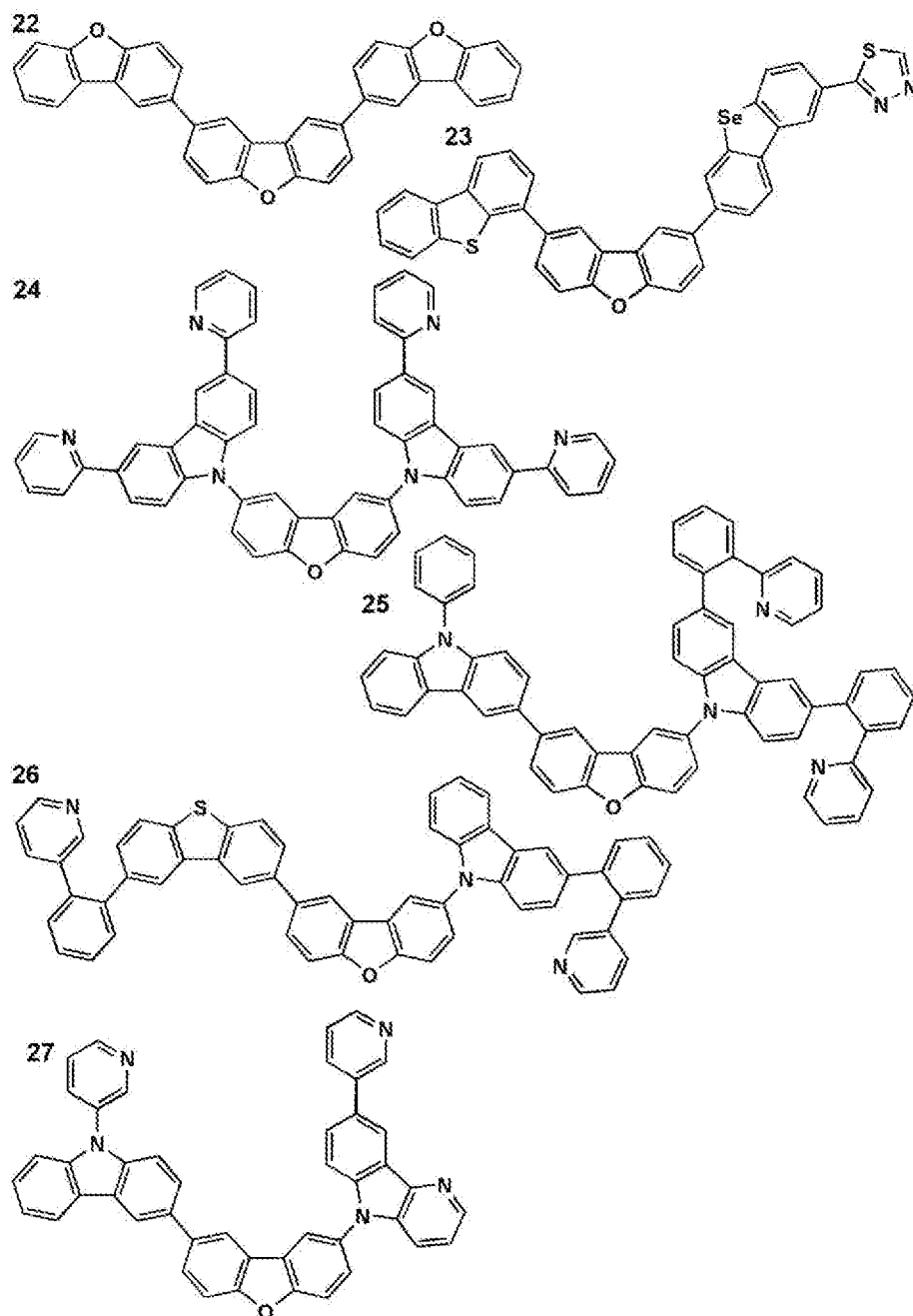


21



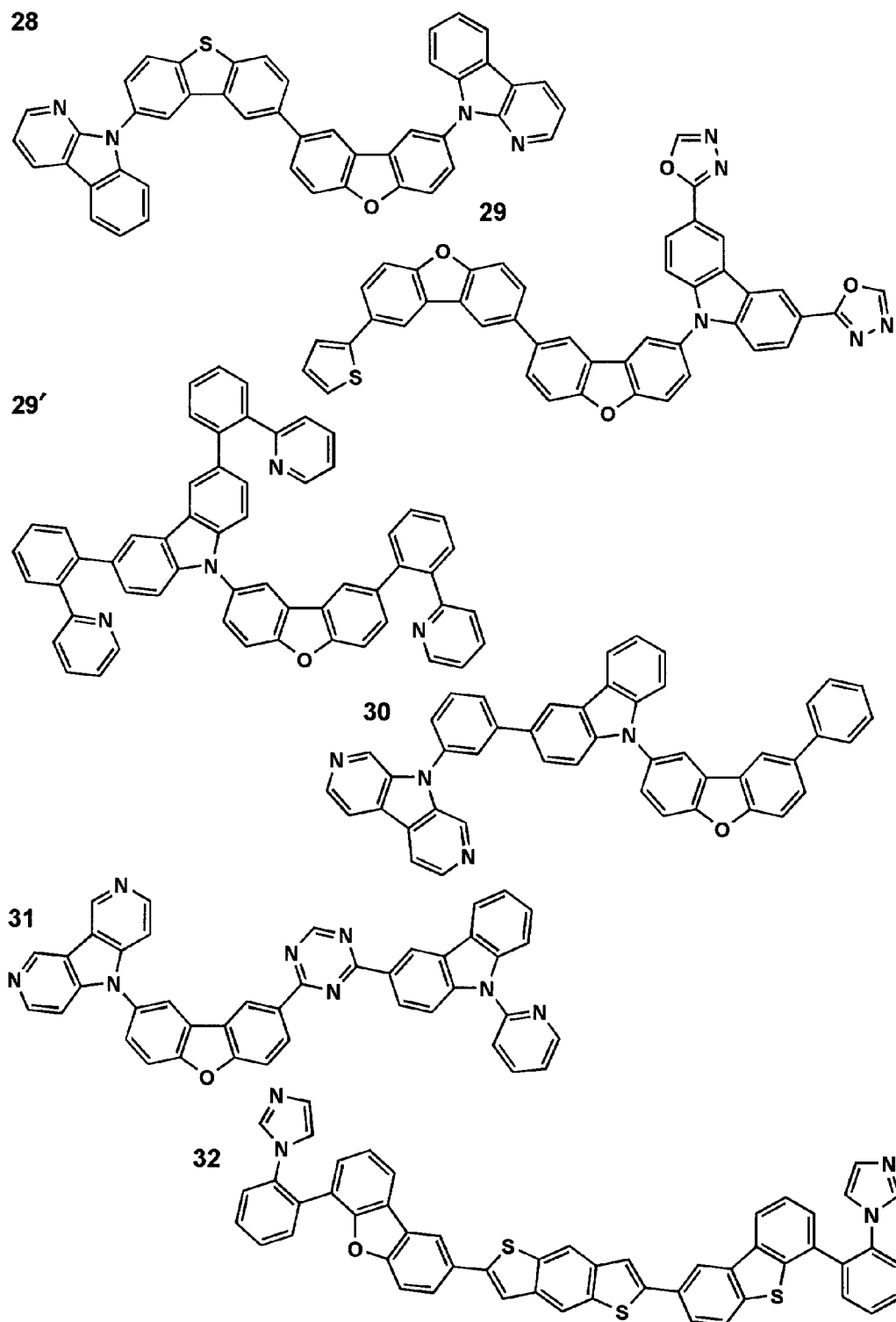
[0096]

[化13]



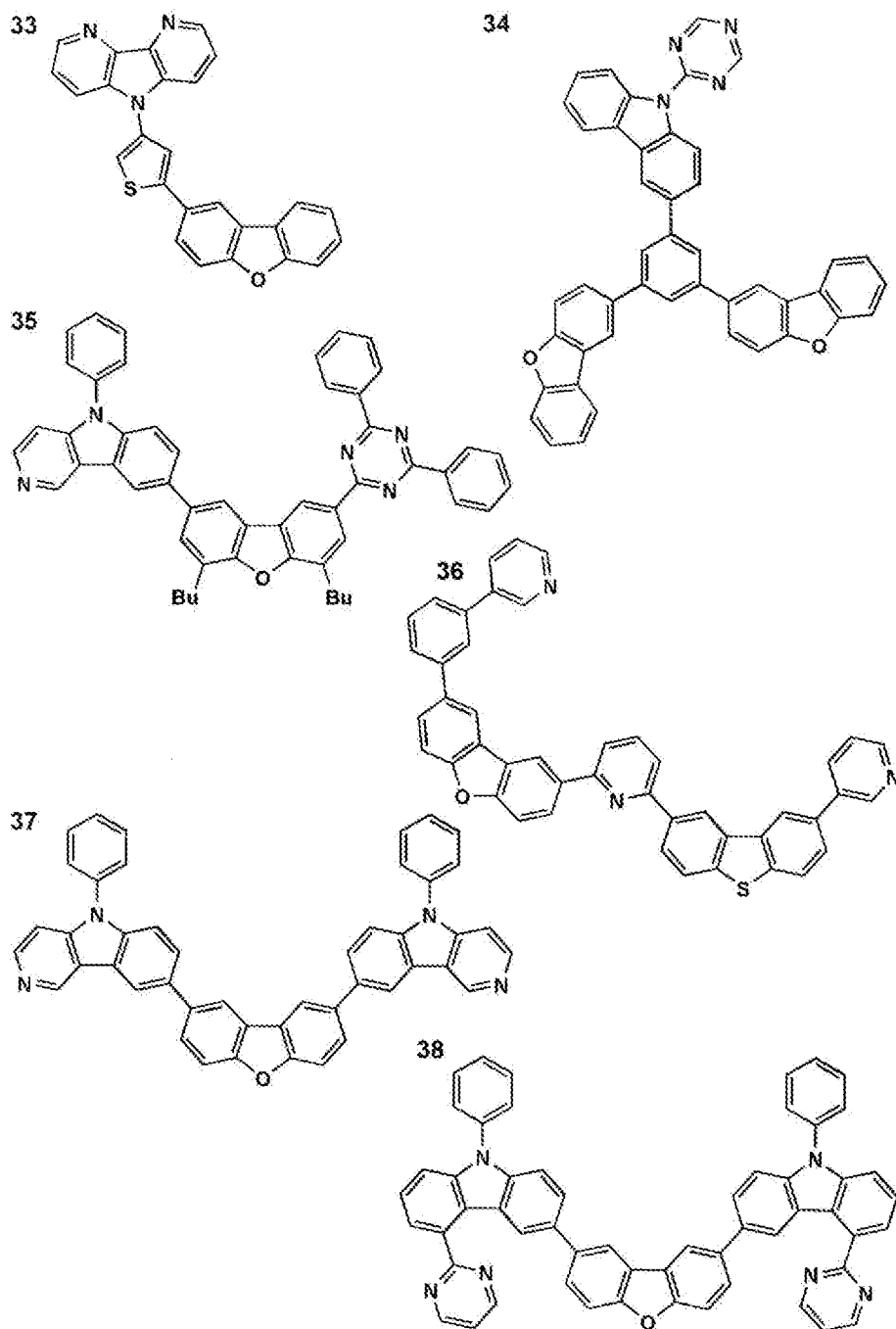
[0097]

[化14]



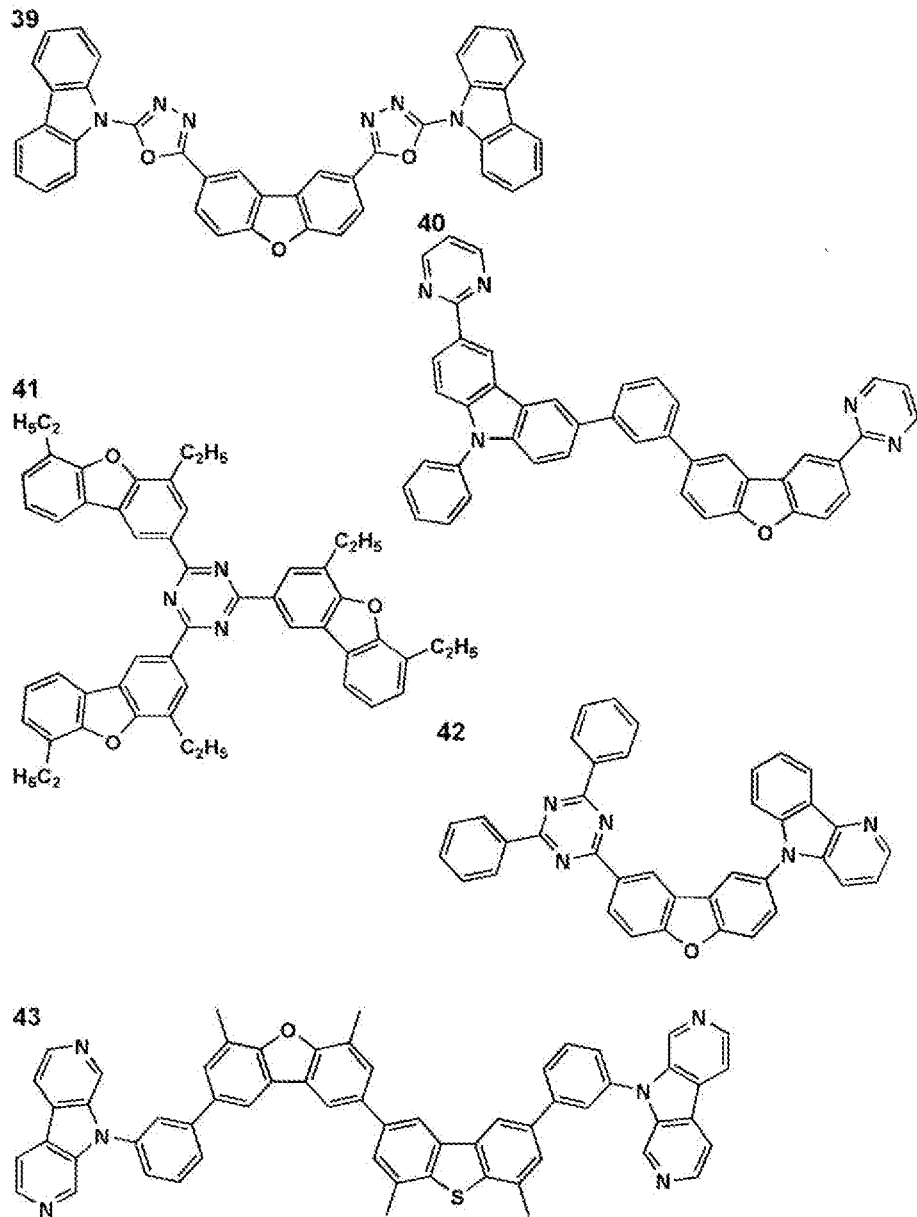
[0098]

[化15]



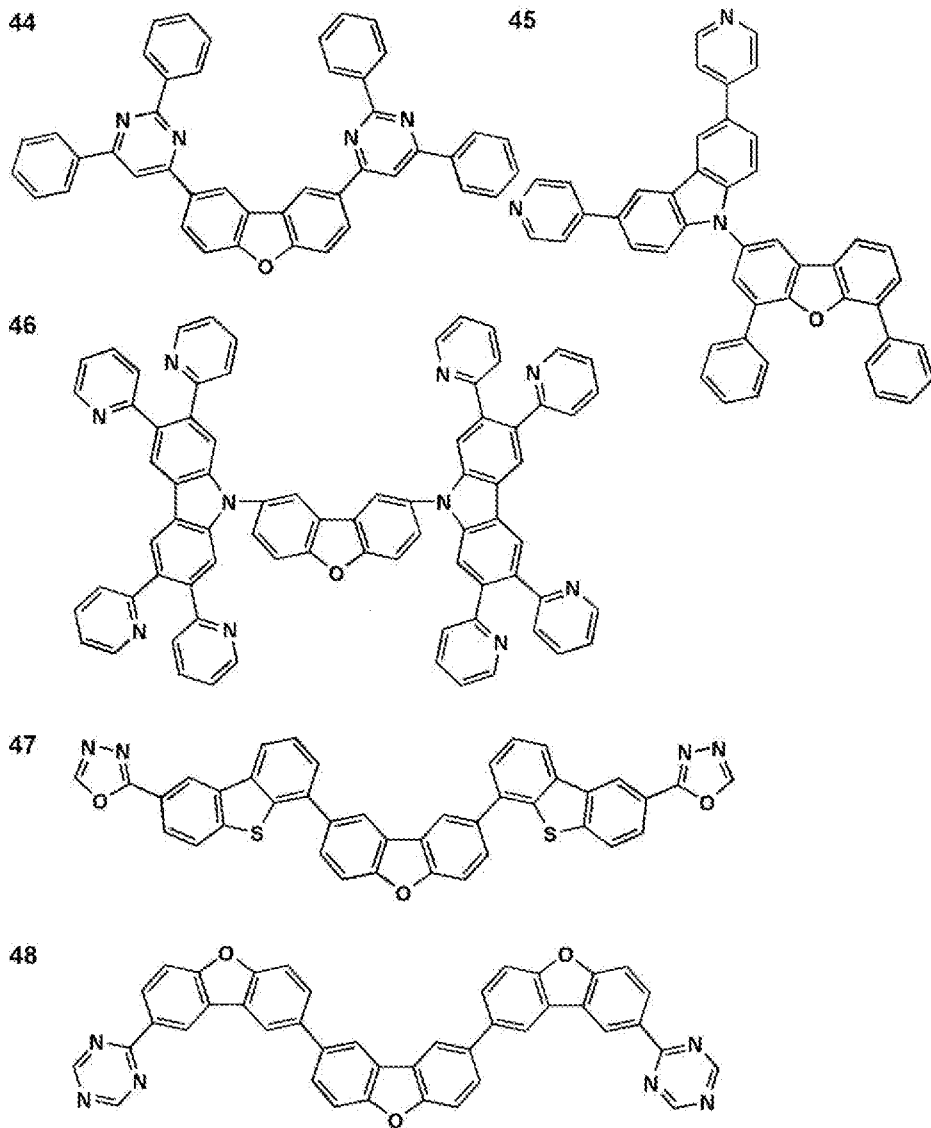
[0099]

[化16]



[0100]

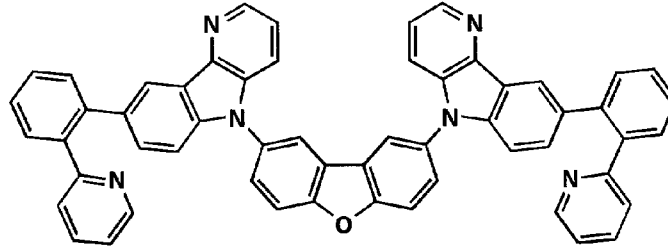
[化17]



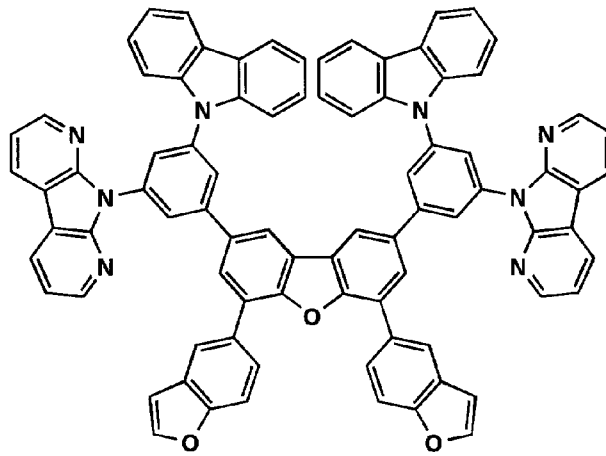
[0101]

[化18]

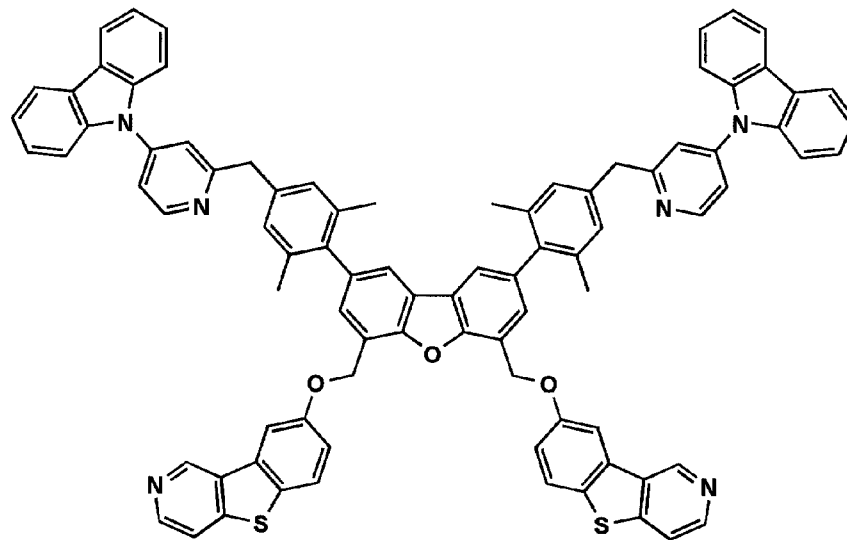
49



50



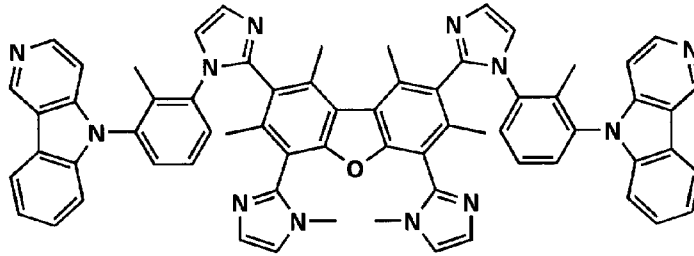
51



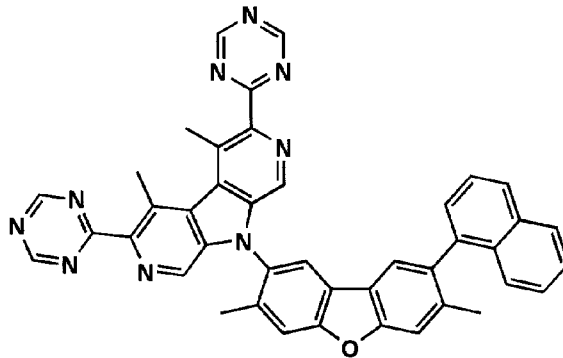
[0102]

[化19]

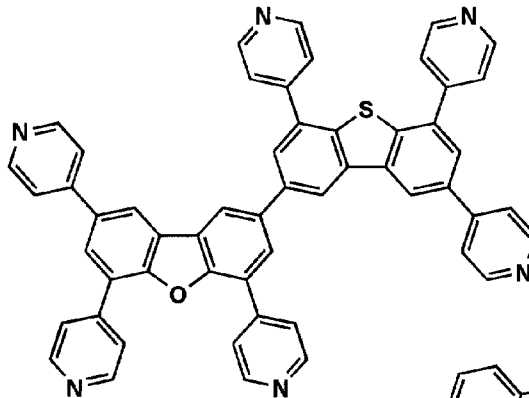
52



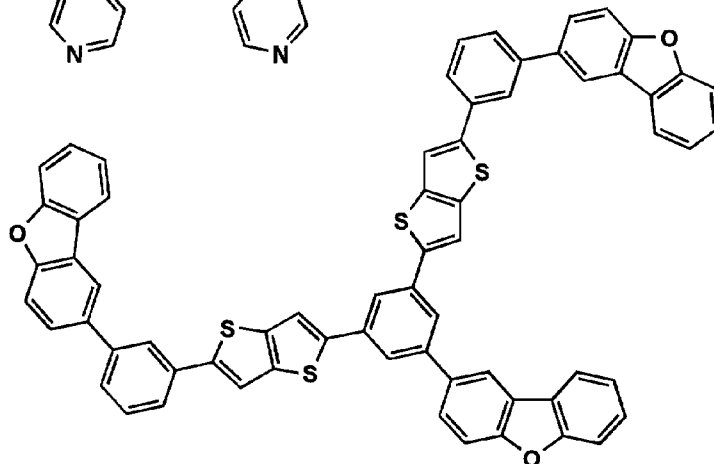
53



54



55



[0103] 本発明に係る一般式(1)、(2)、(3)または(4)のいずれかで表される化合物は、国際公開第07/111176号パンフレット、Chem

. Mater. 2008, 20, 5951、実験化学講座第5版（日本化学会編）等に記載の公知の方法を参照して合成することができる。

[0104] 《一般式（5）で表される化合物》

本発明の有機EL素子に含有されるリン光発光性の金属錯体としては、上記一般式（5）で表される化合物が好ましい。

[0105] 以下、一般式（5）で表される化合物について説明する。尚、一般式（5）で表されるリン光発光性の金属錯体は、本発明の有機EL素子の発光層に発光ドーパントとして含有されることが好ましい態様であるが、発光層以外の構成層（本発明の有機EL素子の構成層については後に詳細に説明する。）に含有されていても良い。

[0106] 一般式（5）において、A1がP-Cと共に形成する芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、*o*-テルフェニル環、*m*-テルフェニル環、*p*-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。

[0107] これらの環は更に、一般式（1）において、R1～R7で各々表される置換基を有してもよい。

[0108] 一般式（5）において、A1が、P-Cと共に形成する芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環等が挙げられる。

[0109] ここで、アザカルバゾール環とは、前記カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が1つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

- [0110] これらの環は更に、一般式（１）において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される置換基を有してもよい。
- [0111] 一般式（５）において、 A_2 が、 $Q-N$ と共に形成する芳香族複素環としては、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。
- [0112] これらの環は更に、一般式（１）において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される置換基を有してもよい。
- [0113] 一般式（５）において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される２座の配位子の具体例としては、フェニルピリジン、フェニルピラゾール、フェニルイミダゾール、フェニルトリアゾール、フェニルテトラゾール、ピラザボール、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。
- [0114] 一般式（５）において、 j_1 は１～３の整数を表し、 j_2 は０～２の整数を表すが、 $j_1 + j_2$ は２または３を表す、中でも、 j_2 は０である場合が好ましい。
- [0115] 一般式（５）において、 M_1 は元素周期表における８族～１０族の遷移金属元素（単に遷移金属ともいう）が用いられるが、中でも、イリジウム好ましい。
- [0116] 《一般式（６）で表される化合物》
本発明に係る一般式（５）で表される化合物の中でも、一般式（６）で表される化合物が好ましい。
- [0117] 一般式（６）において、 Z で表される炭化水素環基としては、非芳香族炭化水素環基、芳香族炭化水素環基が挙げられ、非芳香族炭化水素環基としては、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でも後述する置換基を有していてもよい。
- [0118] また、芳香族炭化水素環基（芳香族炭化水素基、アリール基等ともいう）

としては、例えば、フェニル基、*p*-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ビフェニリル基等が挙げられる。

[0119] これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)において、R₁~R₇で各々表される置換基を有してもよい。

[0120] 一般式(6)において、Zで表される複素環基としては、非芳香族複素環基、芳香族複素環基等が挙げられ、非芳香族複素環基としては、例えば、エポキシ環、アジリジン環、チイラン環、オキセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキサラン環、ピロリジン環、ピラゾリジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、 ϵ -カプロラクトン環、 ϵ -カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1,3-ジオキサン環、1,4-ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1,1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ[2,2,2]-オクタン環等から導出される基を挙げられる。

[0121] これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)において、R₁~R₇で各々表される置換基を有してもよい。

[0122] 芳香族複素環基としては、例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基(例えば、1,2,4-トリアゾール-1-イル基、1,2,3-トリアゾール-1-イル基等)、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基(前記カルボリニル基のカ

ルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す)、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等が挙げられる。

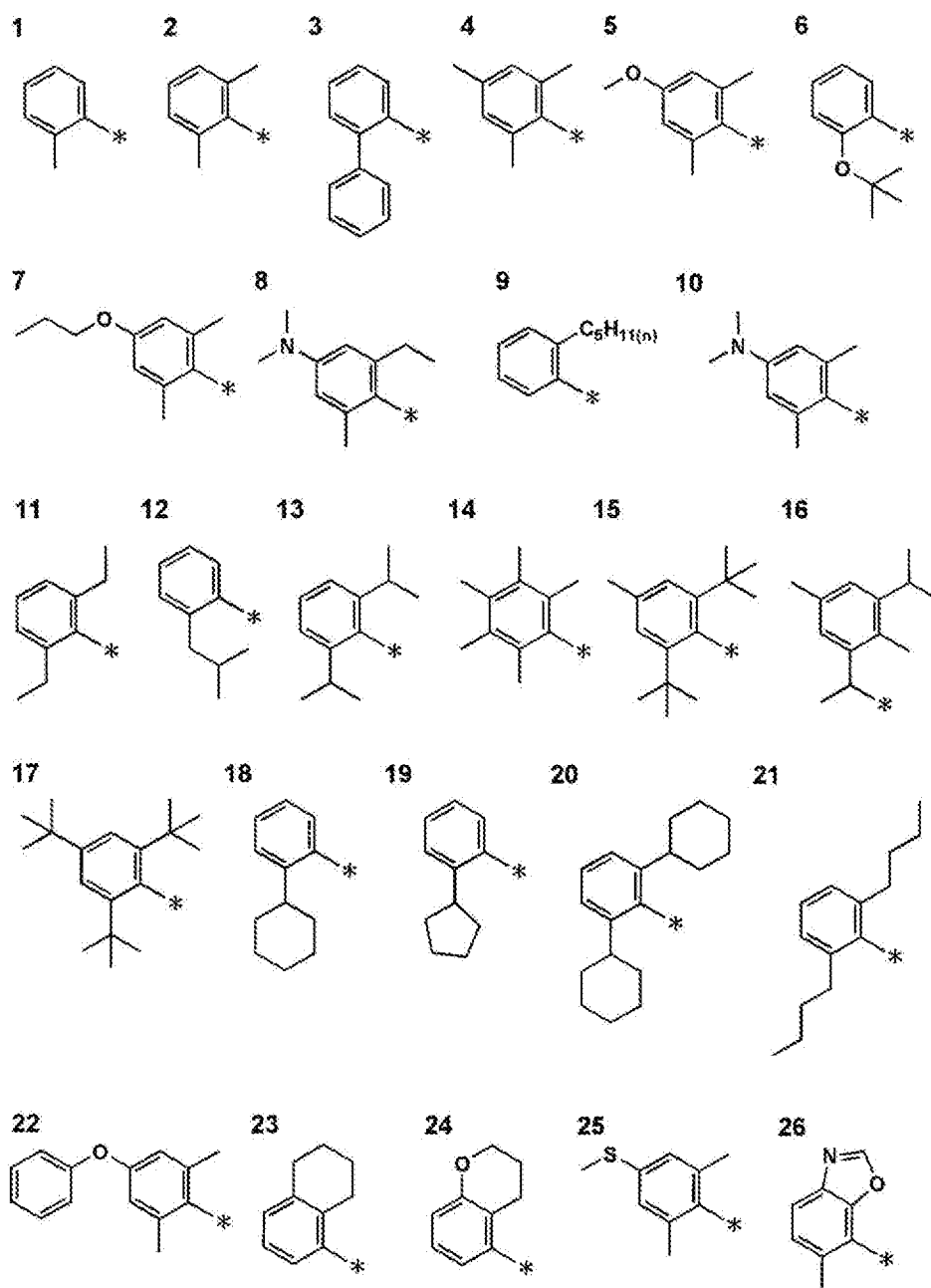
[0123] これらの基は、無置換でもよく、一般式(1)において、R1~R7で各々表される置換基を有してもよい。

[0124] 好ましくは、Zで表される基は芳香族炭化水素環基または芳香族複素環基である。

[0125] 以下に一般式(6)におけるZの好ましい例を挙げるが、Zは以下の例示以外にも無置換でもよく、更に置換基を有していてもよく、これらの例に限定されない。尚、*は結合位置を表す。

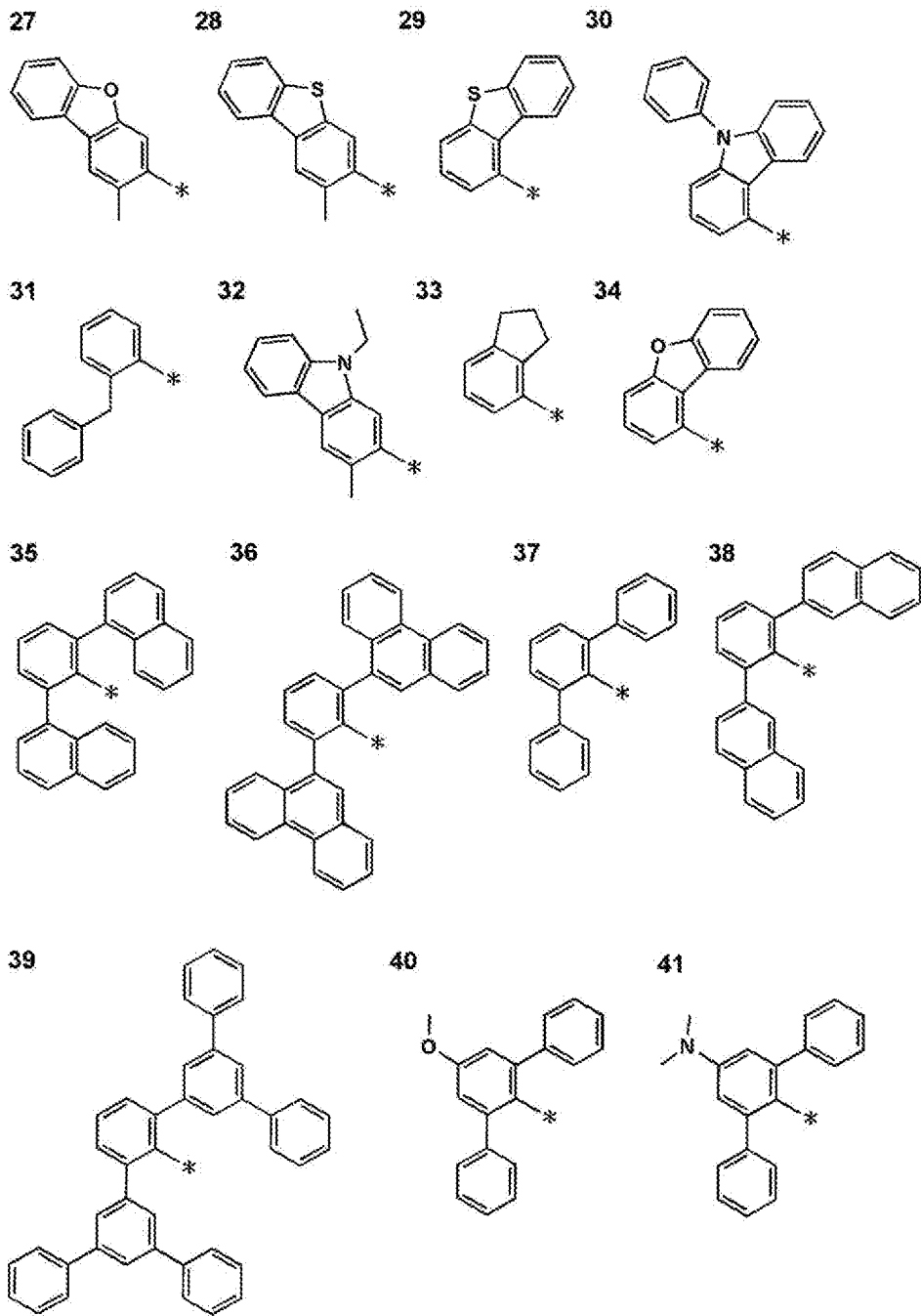
[0126]

[化20]



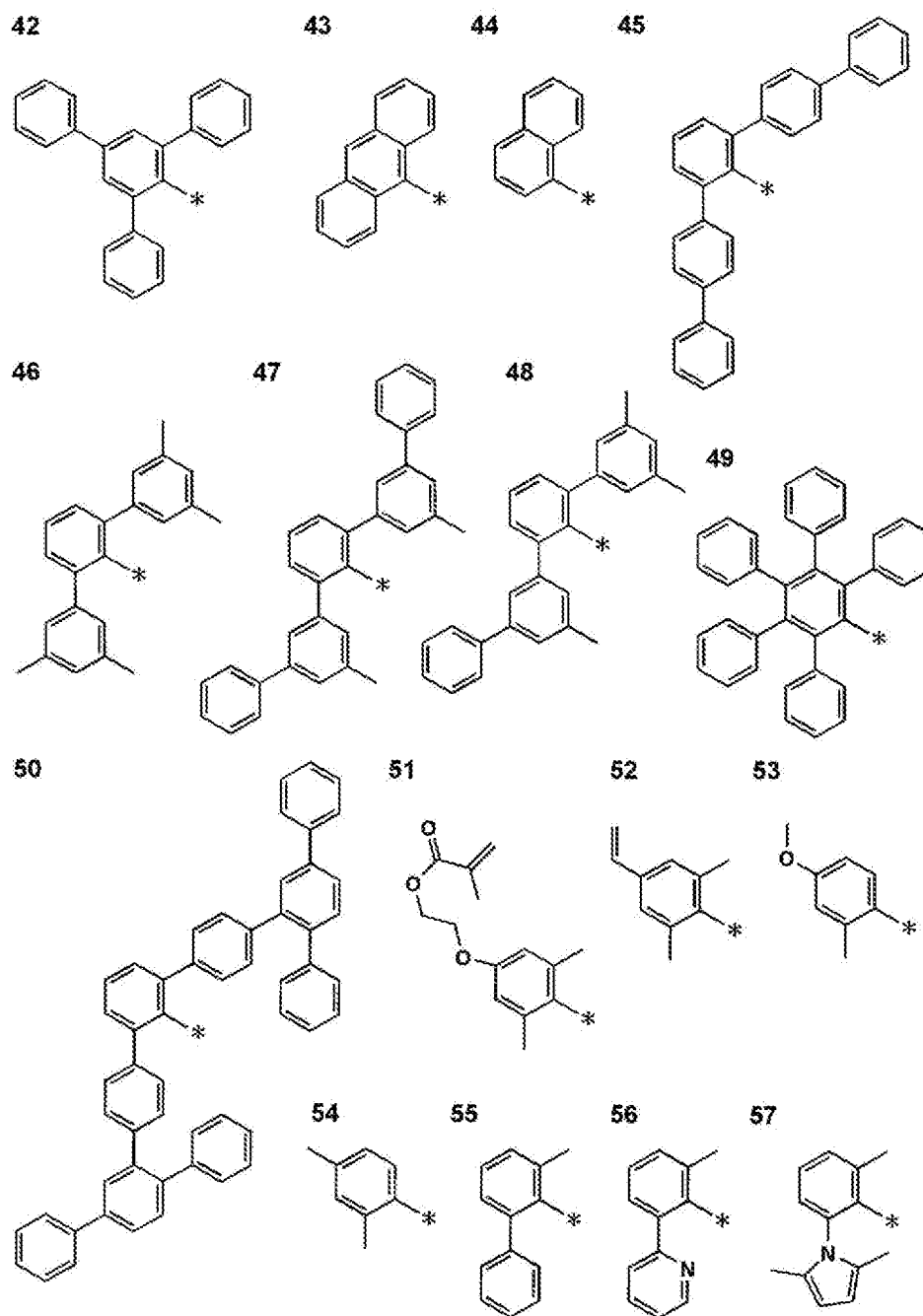
[0127]

[化21]



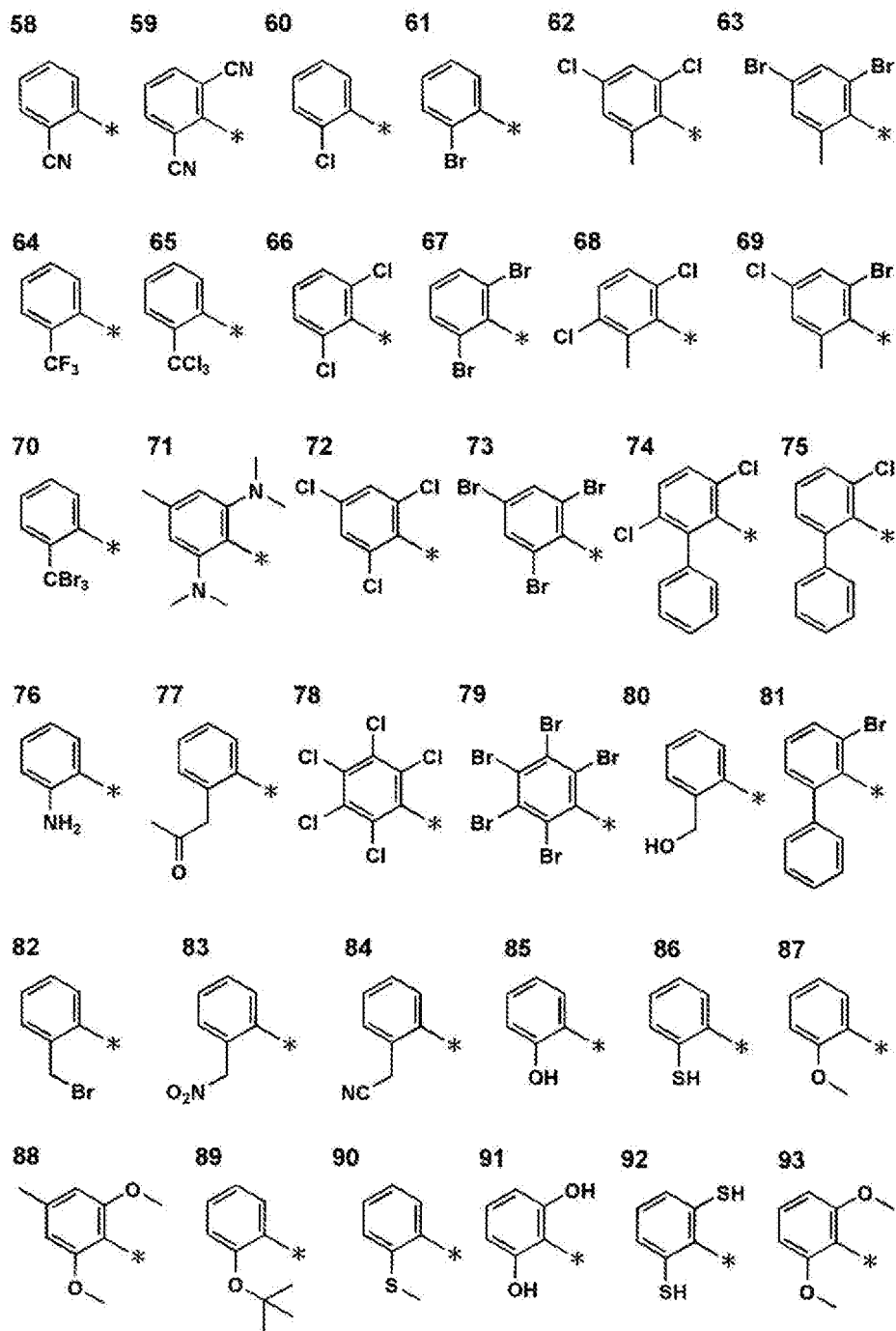
[0128]

[化22]



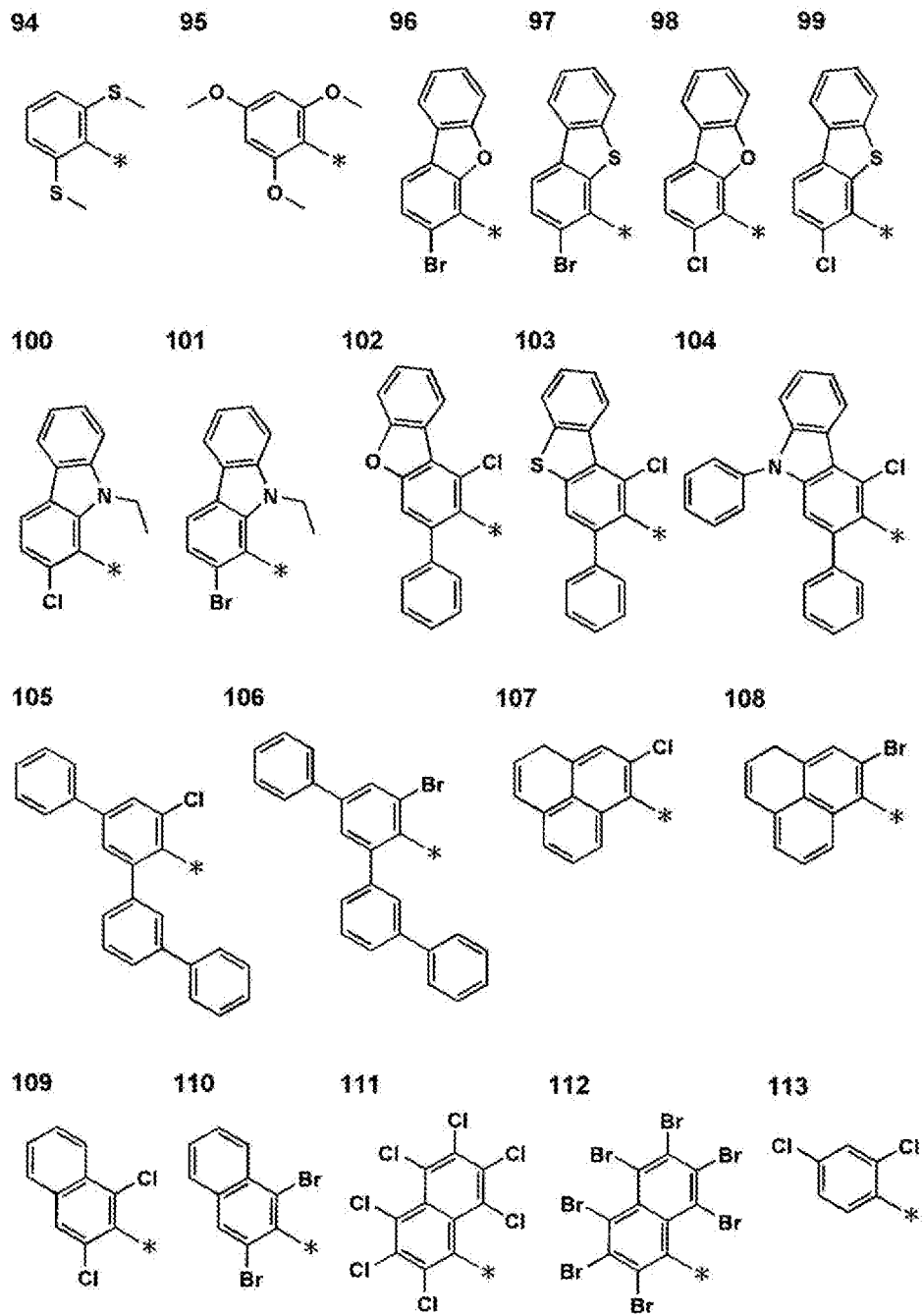
[0129]

[化23]



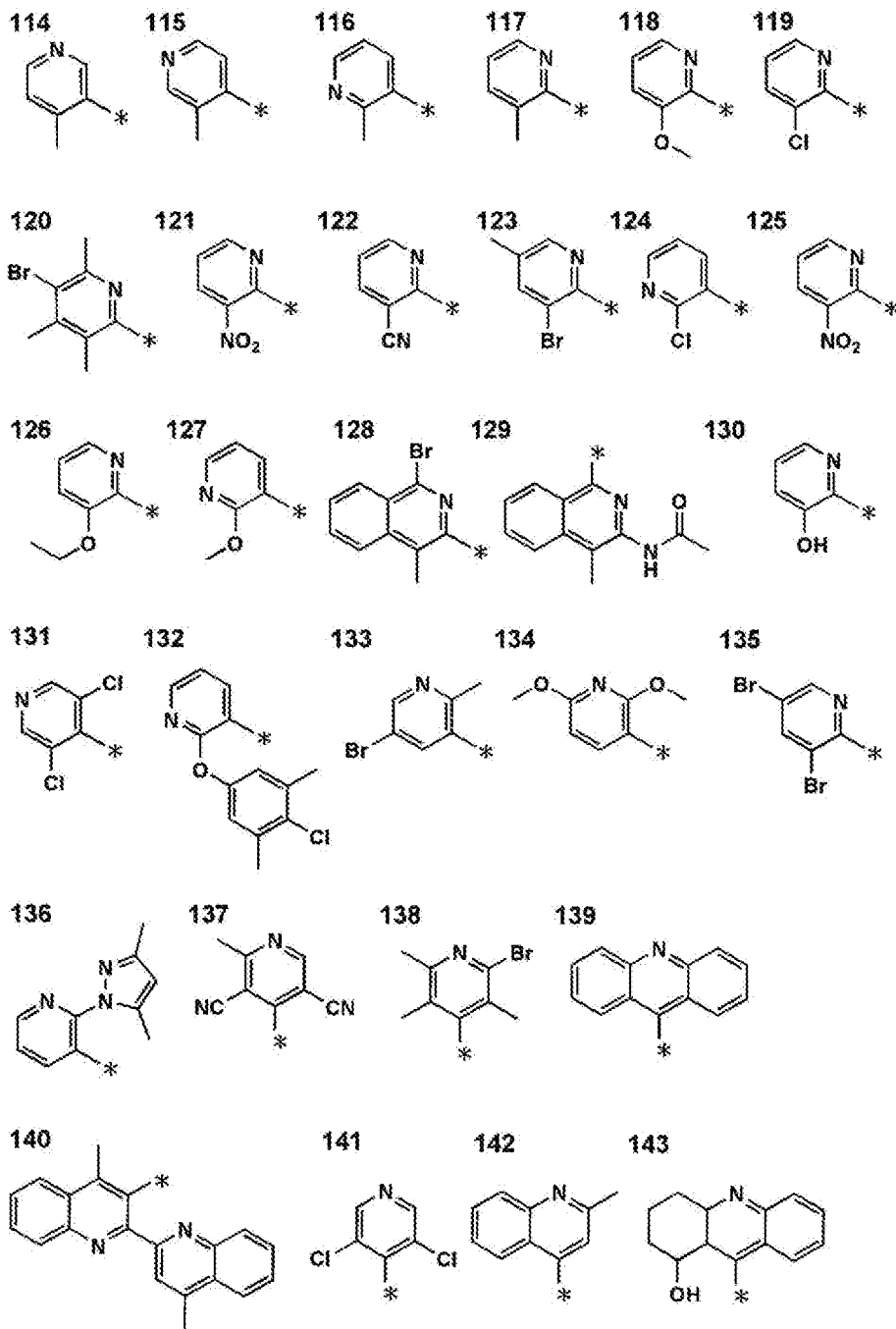
[0130]

[化24]



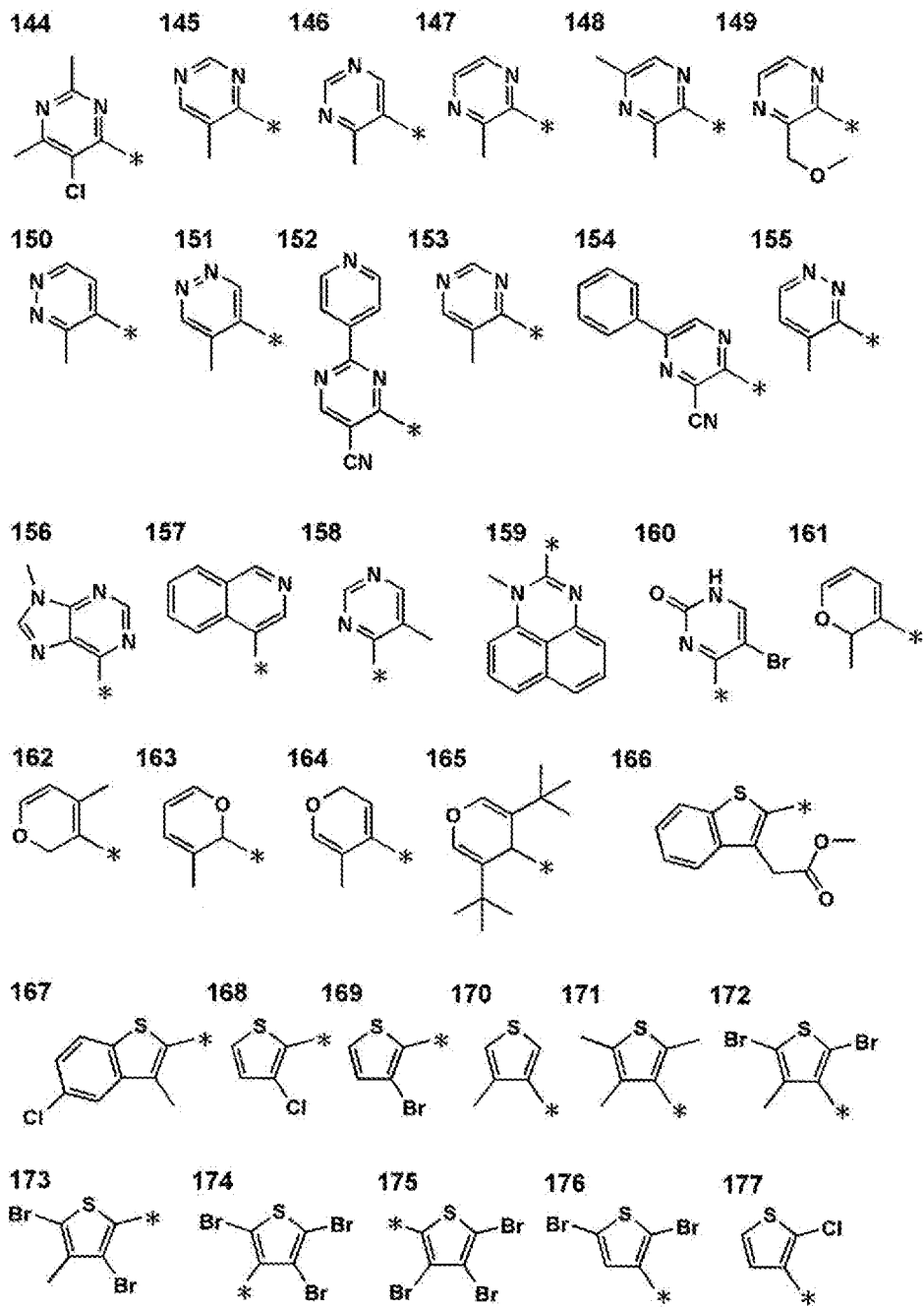
[0131]

[化25]



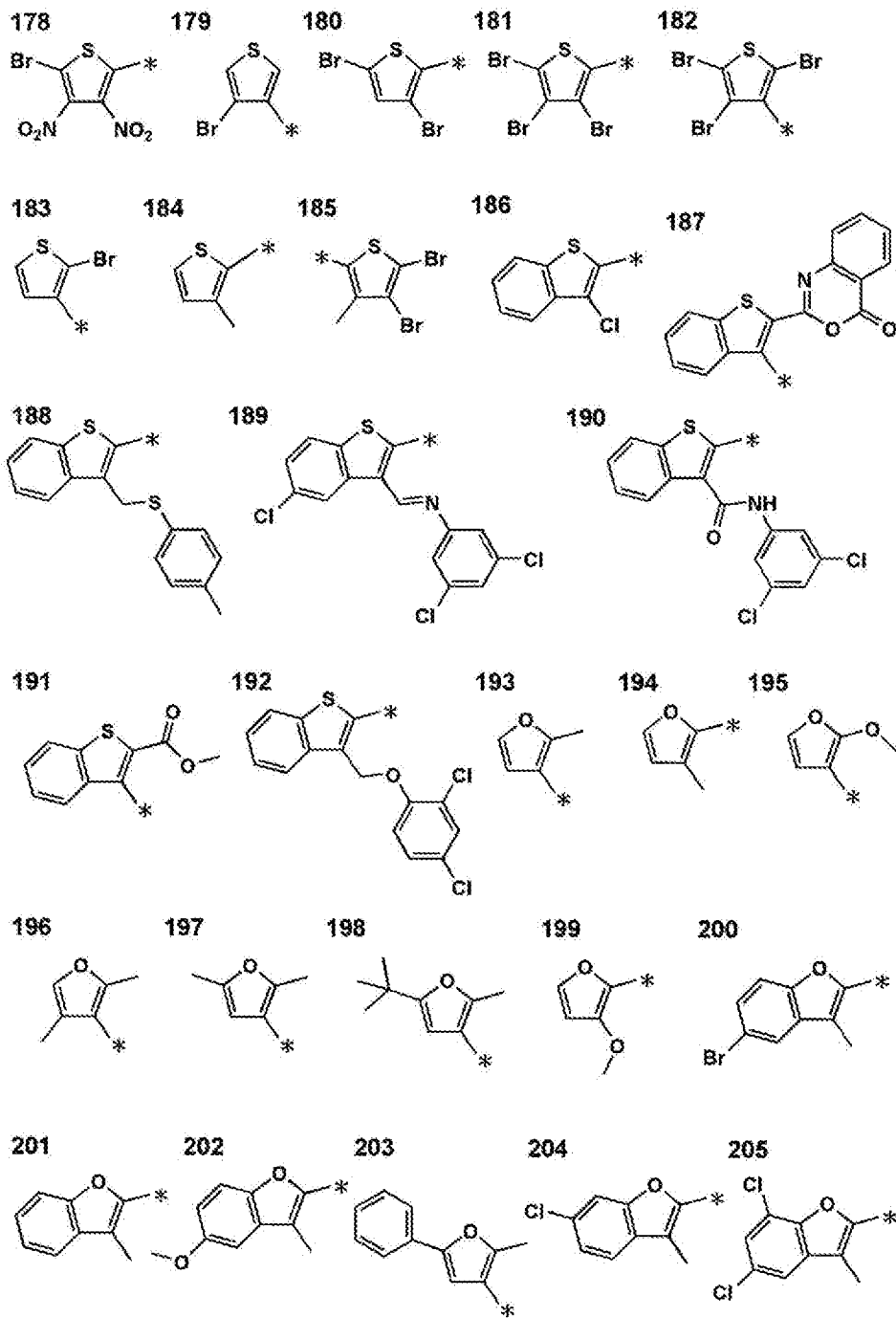
[0132]

[化26]



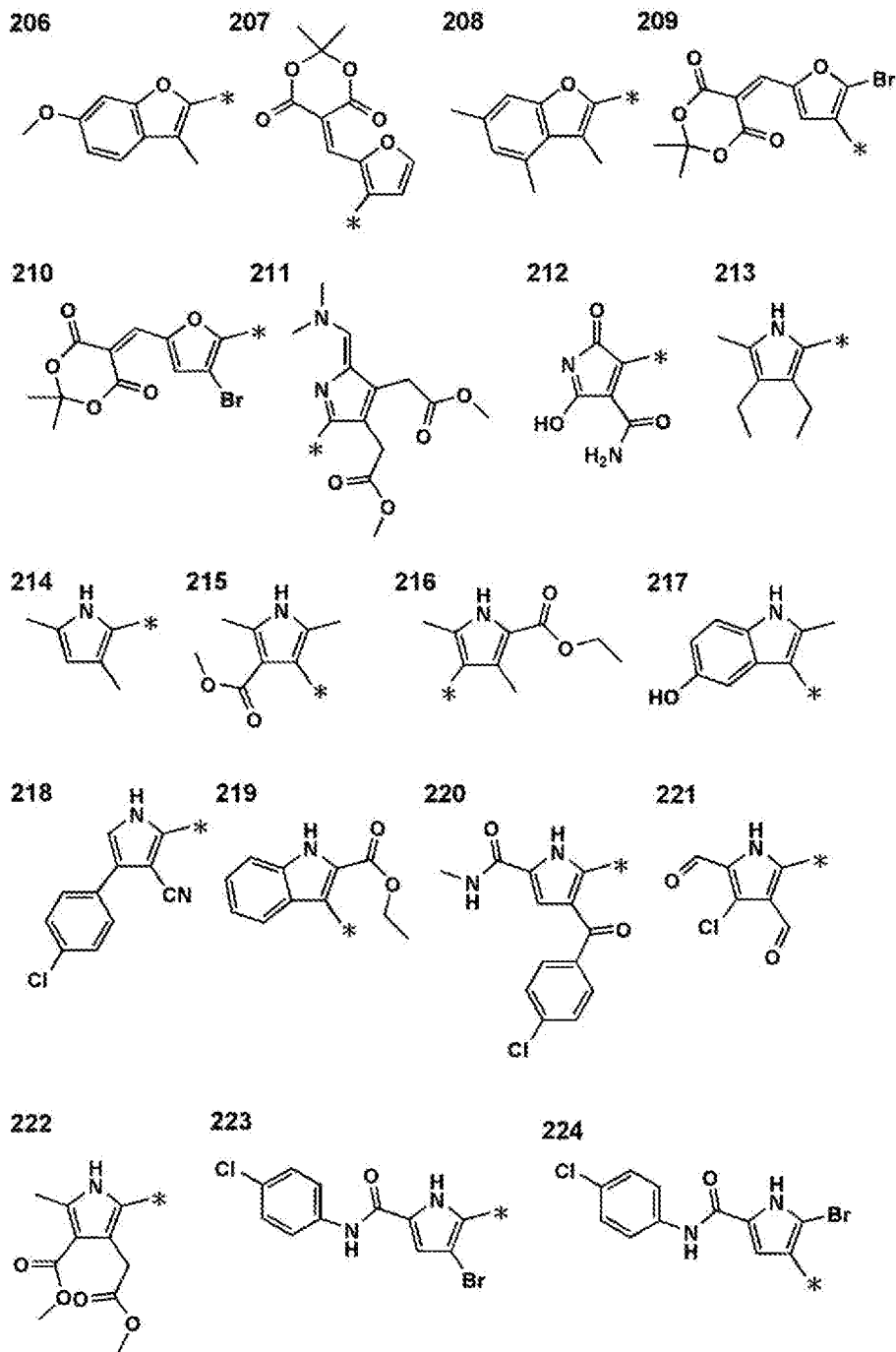
[0133]

[化27]



[0134]

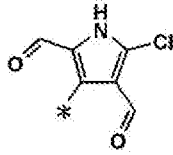
[化28]



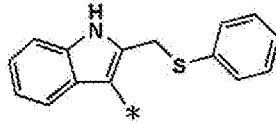
[0135]

[化29]

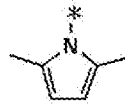
225



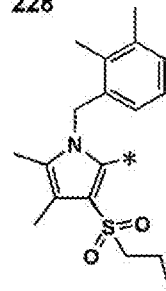
226



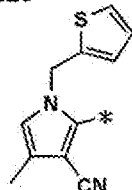
227



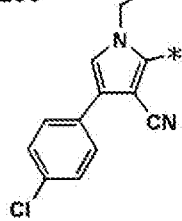
228



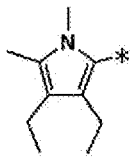
229



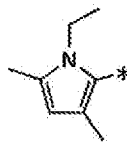
230



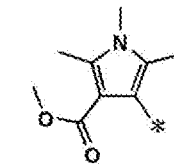
231



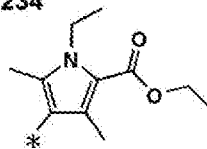
232



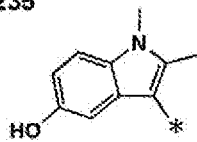
233



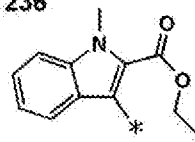
234



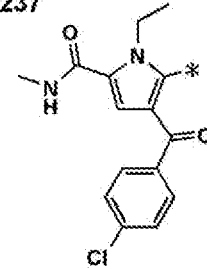
235



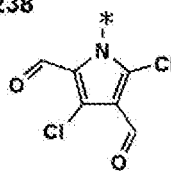
236



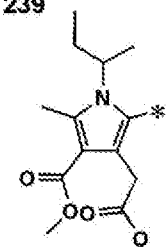
237



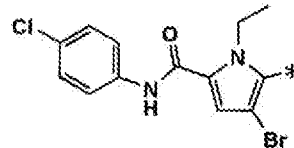
238



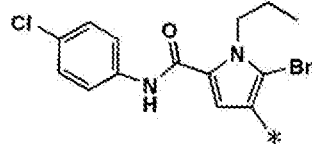
239



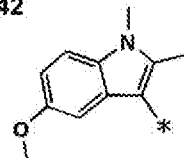
240



241

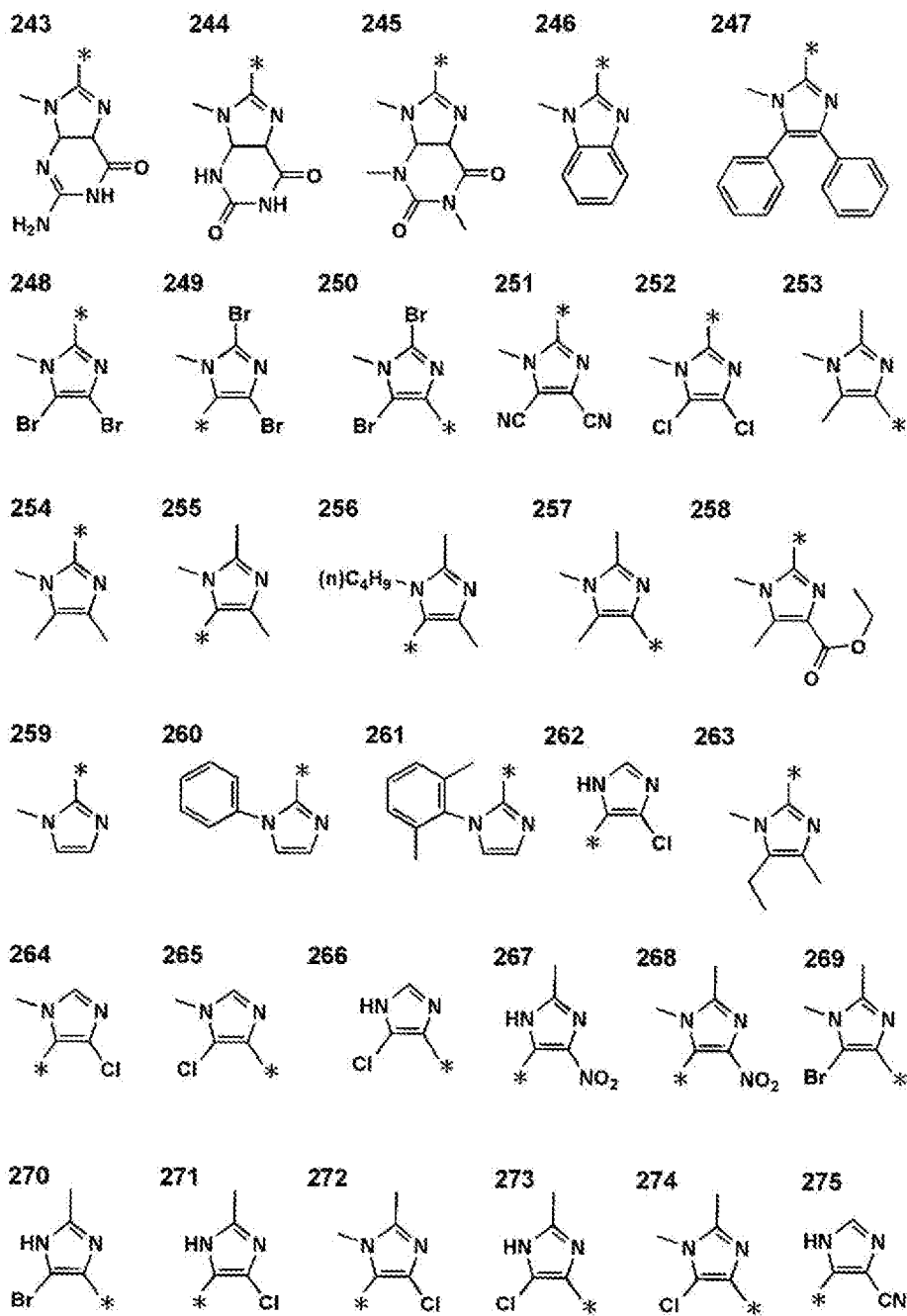


242



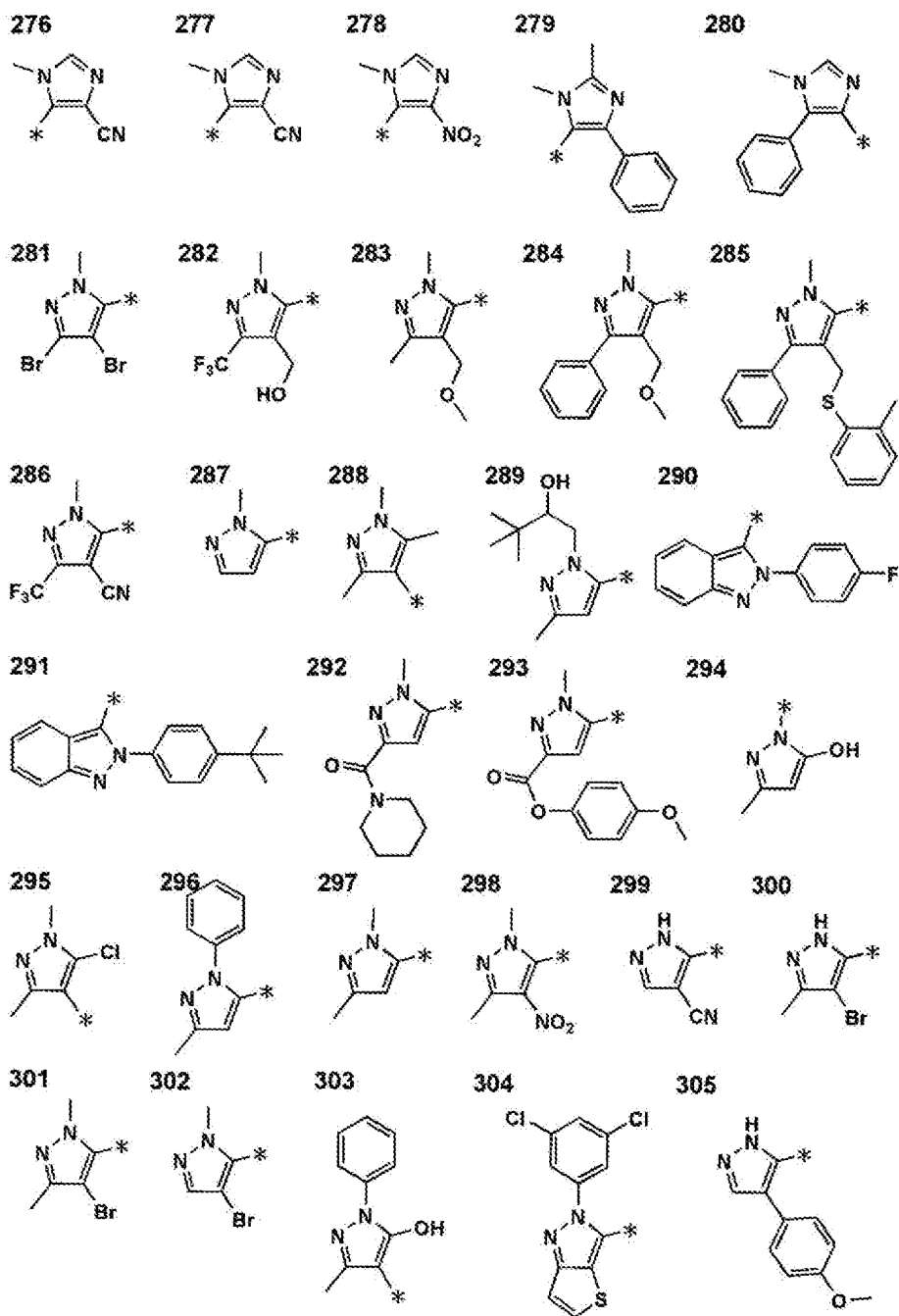
[0136]

[化30]



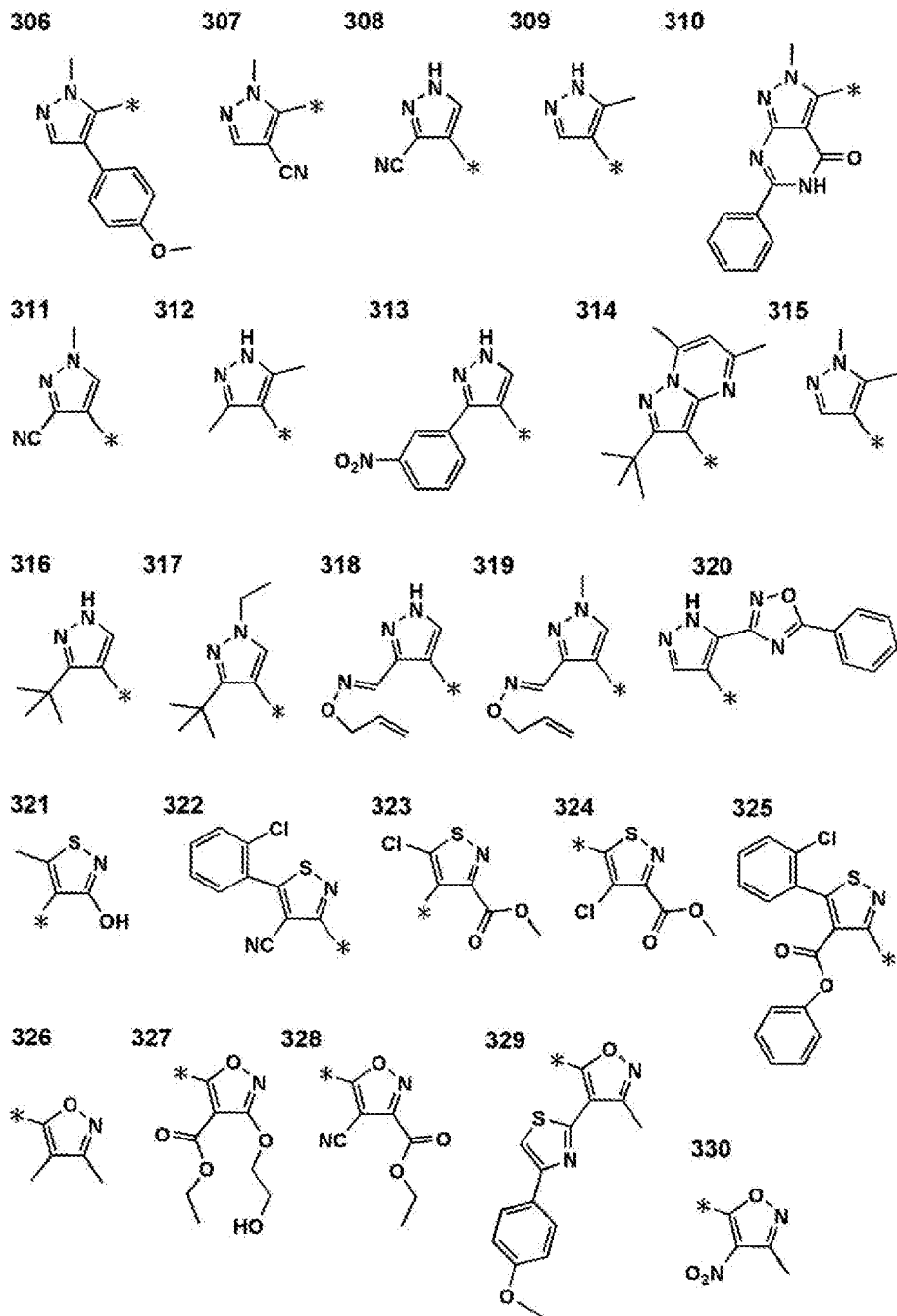
[0137]

[化31]



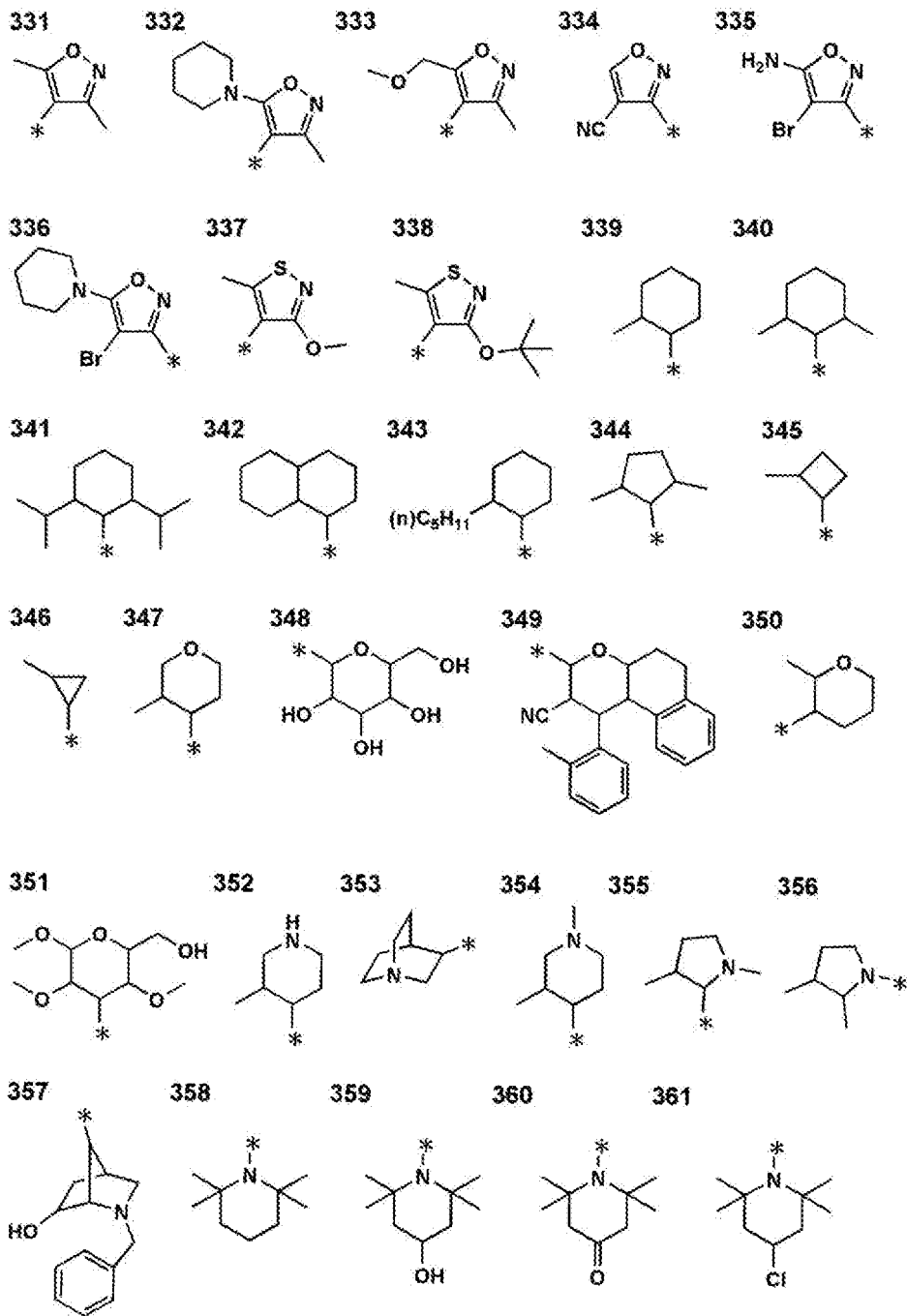
[0138]

[化32]



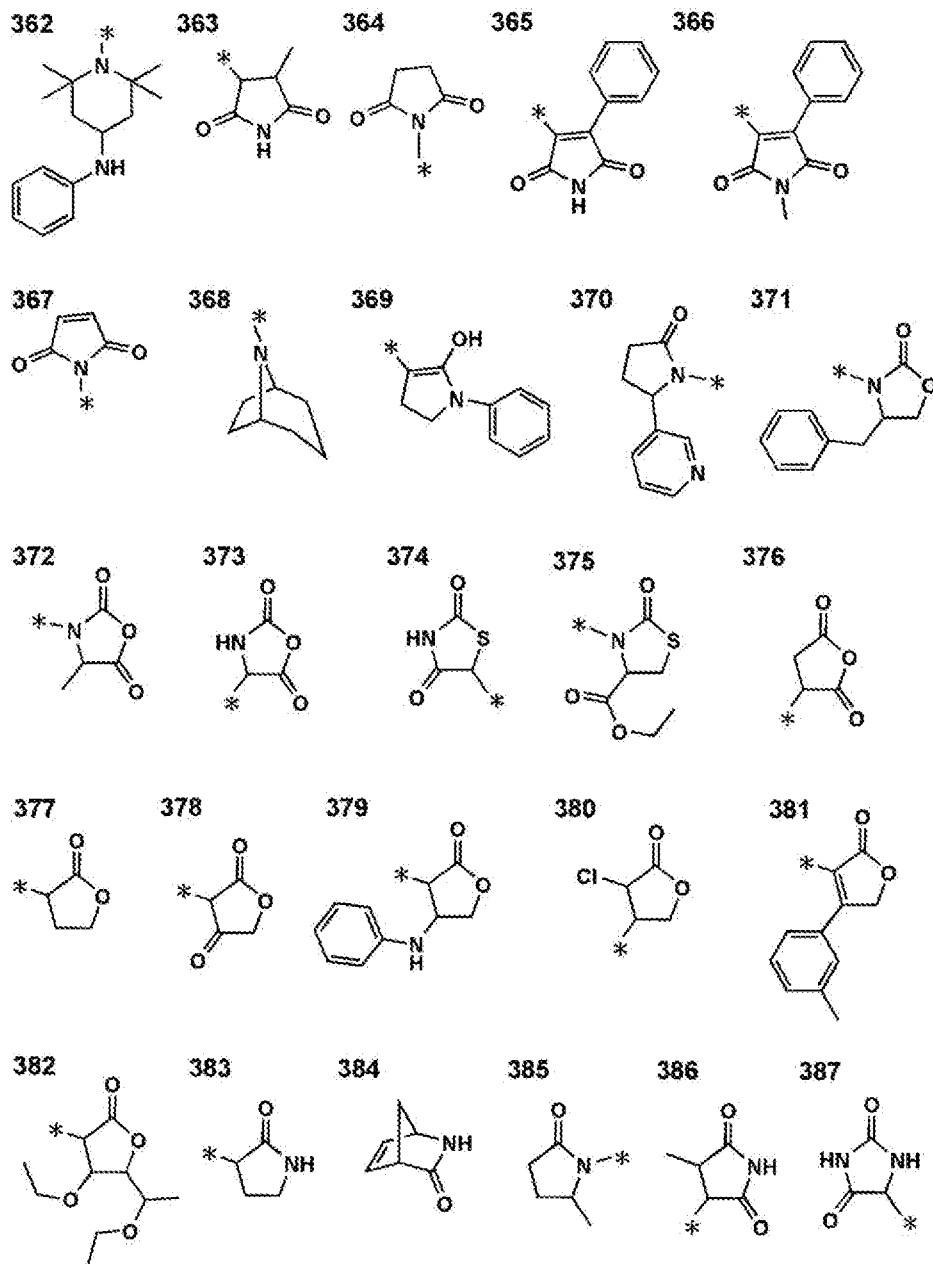
[0139]

[化33]



[0140]

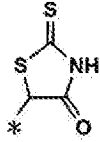
[化34]



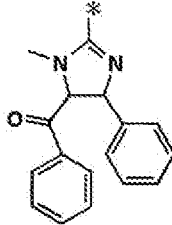
[0141]

[化35]

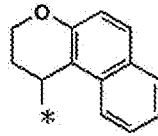
388



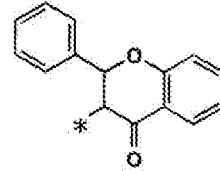
389



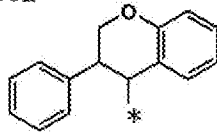
390



391



392



[0142] 一般式(6)において、A1が、P-Cと共に形成する芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、*o*-テルフェニル環、*m*-テルフェニル環、*p*-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。

[0143] これらの環は更に、一般式(1)において、R1~R7で各々表される置換基を有してもよい。

[0144] 一般式(6)において、A1が、P-Cと共に形成する芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、アザカルバゾール環等が挙げられる。

[0145] ここで、アザカルバゾール環とは、前記カルバゾール環を構成するベンゼ

ン環の炭素原子が1つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

- [0146] これらの環は更に、一般式(1)において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される置換基を有してもよい。
- [0147] 一般式(6)のA3で表される、 $-C(R_{01})=C(R_{02})-$ 、 $-N=C(R_{02})-$ 、 $-C(R_{01})=N-$ において、 R_{01} 、 R_{02} で各々表される置換基は、一般式(1)において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される置換基と同義である。
- [0148] 一般式(6)において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される2座の配位子の具体例としては、フェニルピリジン、フェニルピラゾール、フェニルイミダゾール、フェニルトリアゾール、フェニルテトラゾール、ピラザポール、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。
- [0149] また、 j_1 は1~3の整数を表し、 j_2 は0~2の整数を表すが、 $j_1 + j_2$ は2または3を表す、中でも、 j_2 は0である場合が好ましい。
- [0150] 一般式(6)において、 M_1 で表される元素周期表における8族~10族の遷移金属元素(単に遷移金属ともいう)は、一般式(5)において、 M_1 で表される元素周期表における8族~10族の遷移金属元素と同義である。
- [0151] 《一般式(7)で表される化合物》
上記一般式(6)で表される化合物の好ましい態様のひとつとして、上記一般式(7)で表される化合物が挙げられる。
- [0152] 一般式(7)において、 R_{03} 、 R_{04} 、 R_{05} 、 R_{06} で各々表される置換基は、一般式(1)において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される置換基と同義である。
- [0153] 一般式(7)において、 Z_1 がC-Cと共に形成する6員の芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環が挙げられる。
- [0154] これらの環は更に、一般式(1)において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される置換基を有してもよい。
- [0155] 一般式(7)において、 Z_1 がC-Cと共に形成する5員または6員の芳香族複素環としては、例えば、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール

環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、チオフェン環、フラン環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

[0156] これらの環は更に、一般式（１）において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される置換基を有してもよい。

[0157] 一般式（７）において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される２座の配位子は、一般式（５）において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される２座の配位子と同義である。

[0158] 一般式（７）において、 M_1 で表される元素周期表における８族～１０族の遷移金属元素は、一般式（５）において、 M_1 で表される元素周期表における８族～１０族の遷移金属元素と同義である。

[0159] 《一般式（８）で表される化合物》

更に、一般式（７）で表される化合物の中でも、上記一般式（８）で表される化合物が好ましい。

[0160] 一般式（８）において、 R_{03} 、 R_{04} 、 R_{05} 、 R_{06} 、 R_{07} で各々表される置換基は、一般式（１）において、 $R_1 \sim R_7$ で各々表される置換基と同義である。

[0161] 一般式（８）において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される２座の配位子は、一般式（５）において、 $P_1-L_1-P_2$ で表される２座の配位子と同義である。

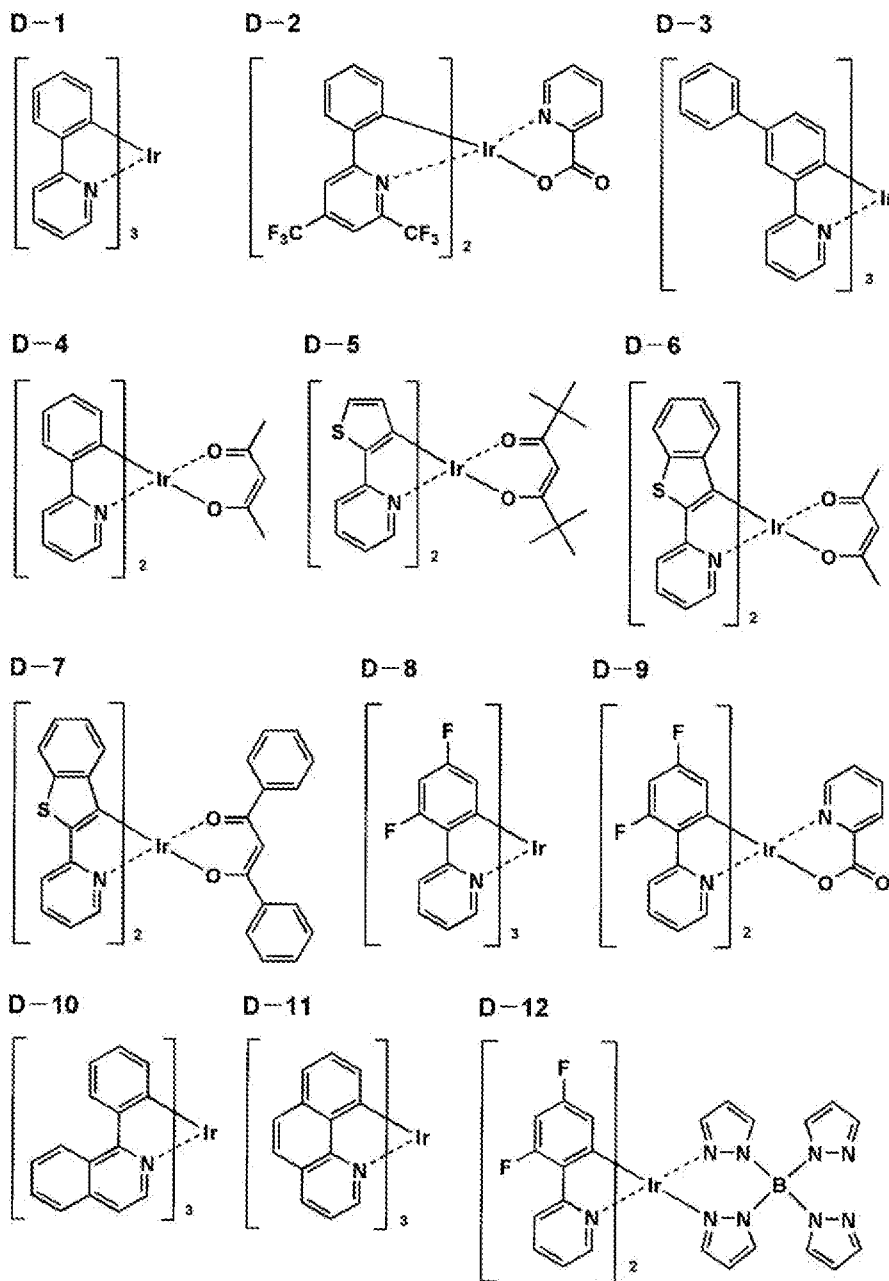
[0162] 一般式（８）において、 M_1 で表される元素周期表における８族～１０族の遷移金属元素は、一般式（５）において、 M_1 で表される元素周期表における８族～１０族の遷移金属元素と同義である。

[0163] 本発明に係る一般式（５）、（６）、（７）または（８）で各々表される化合物は、Eur. J. Chem. 2005, 1637-1643等に記載の方法で、含窒素環化合物またはイミダゾール化合物に対応するハロゲン化合物を反応させるか、SYNTHESIS 2003, 17, 2661-2666等に記載の、対応するアミンとグリオキザール、及びアルデヒドと塩化アンモニウムとの反応等を参照することにより合成可能である。

[0164] 以下、本発明に係る一般式（５）、（６）、（７）または（８）のいずれ

かで表される化合物（金属錯体ともいう）の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

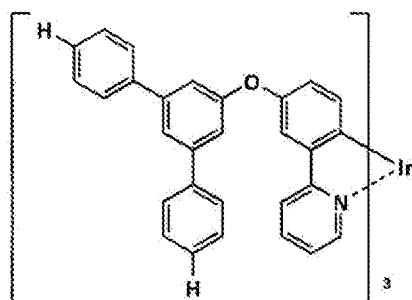
[0165] [化36]



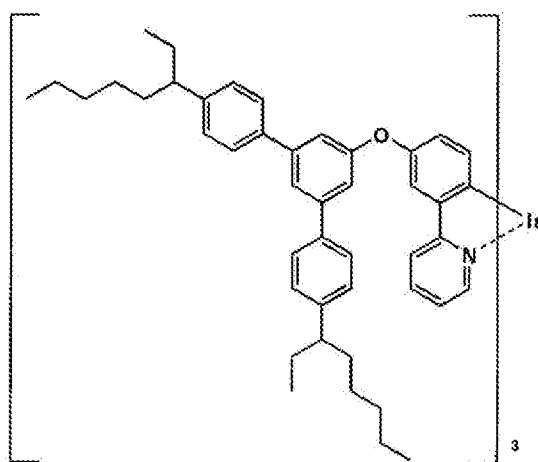
[0166]

[化37]

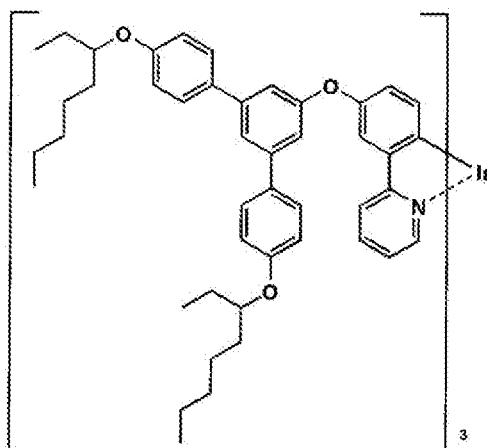
D-13



D-14

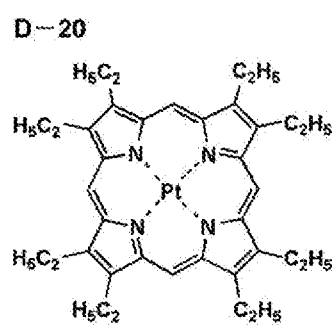
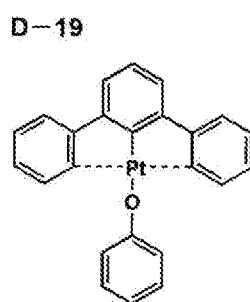
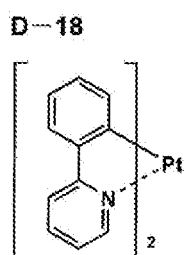
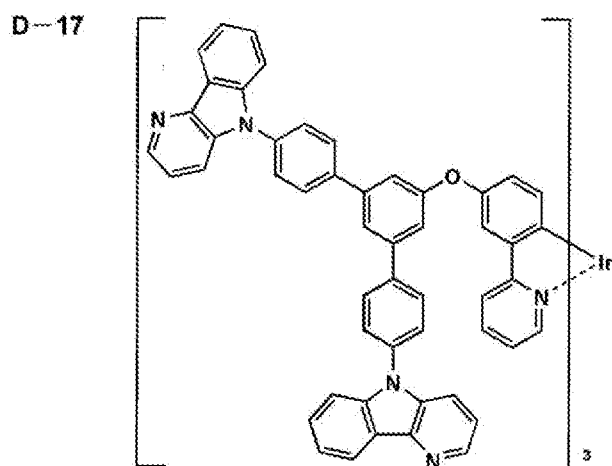
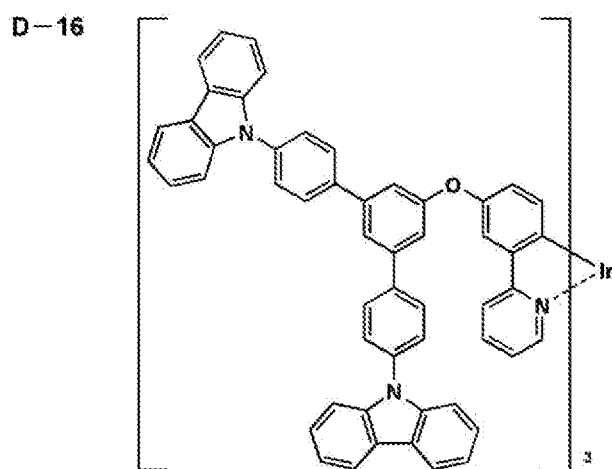


D-15



[0167]

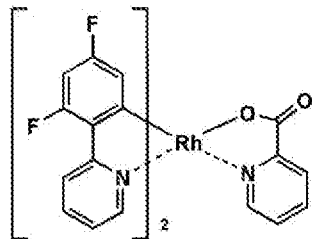
[化38]



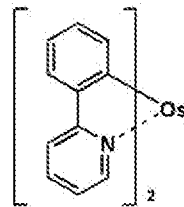
[0168]

[化39]

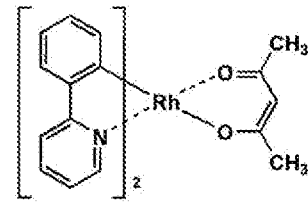
D-21



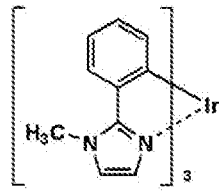
D-22



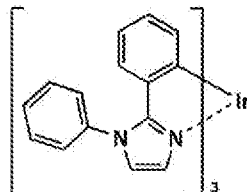
D-23



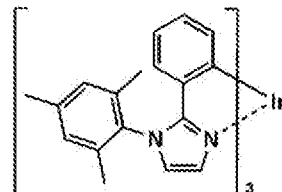
D-24



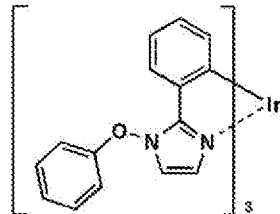
D-25



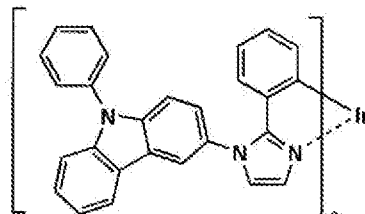
D-26



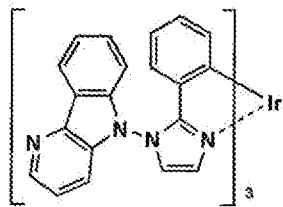
D-27



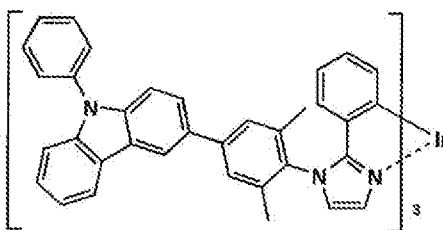
D-28



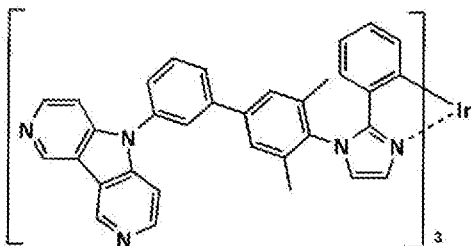
D-29



D-30

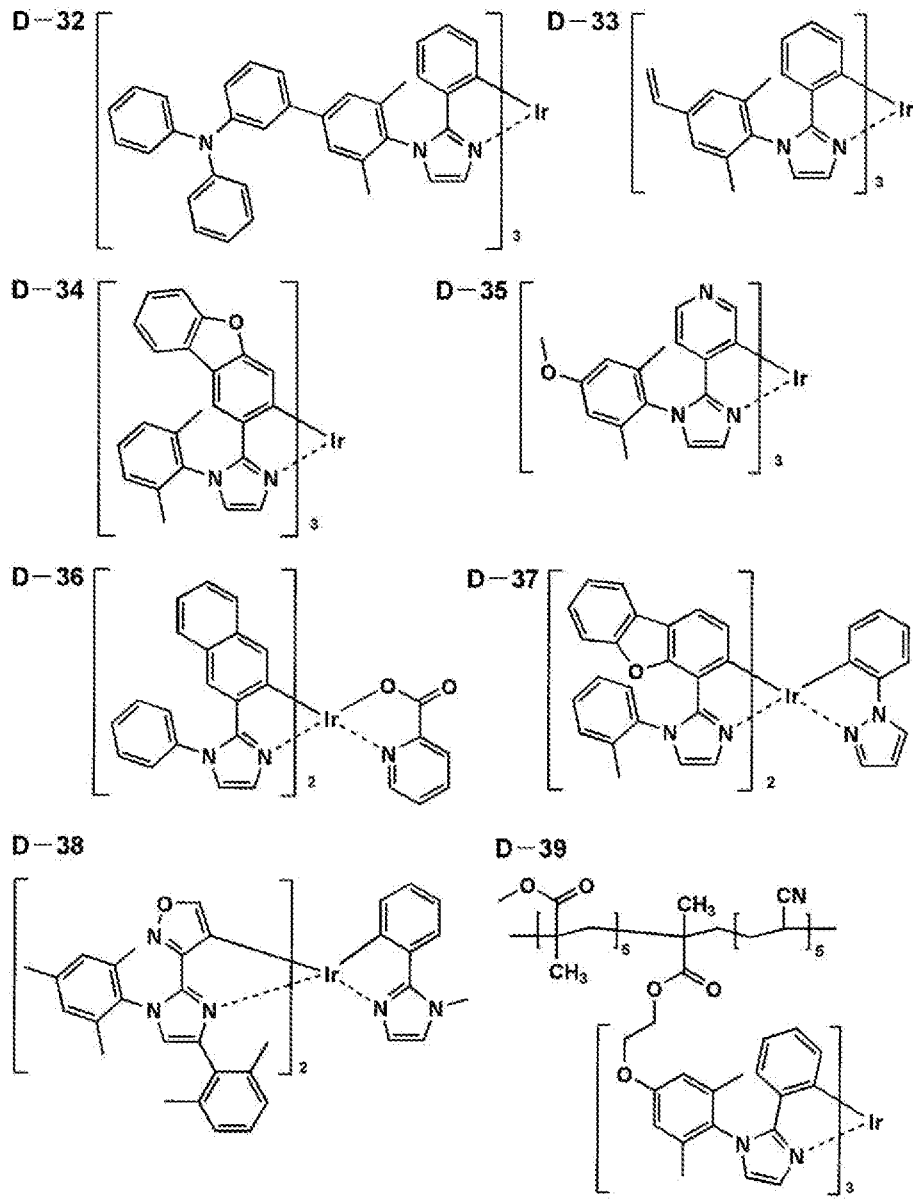


D-31



[0169]

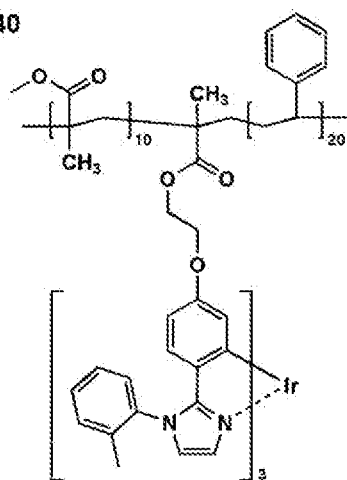
[化40]



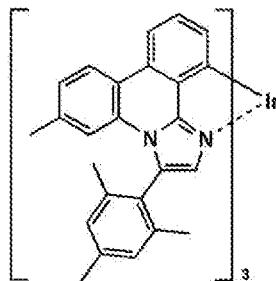
[0170]

[化41]

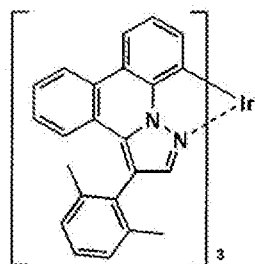
D-40



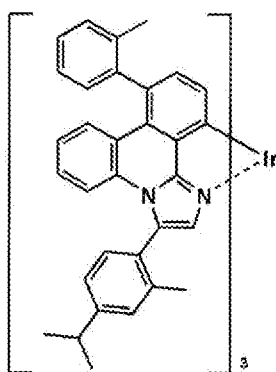
D-41



D-42



D-43



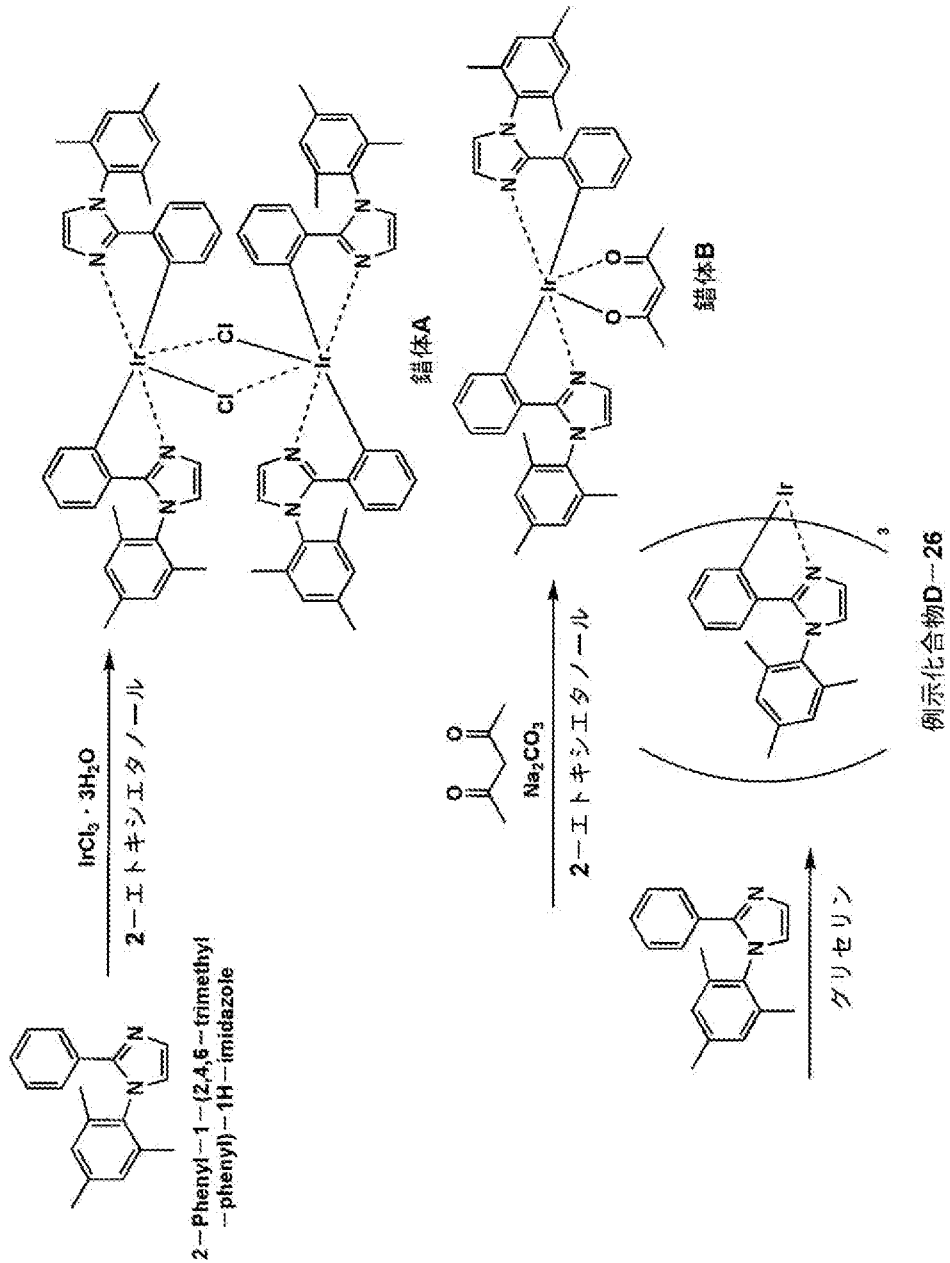
[0171] これらの金属錯体は、例えば、Organic Letter誌、vol 3、No. 16、2579~2581頁(2001)、Inorganic Chemistry、第30巻、第8号、1685~1687頁(1991年)、J. Am. Chem. Soc.、123巻、4304頁(2001年)、Inorganic Chemistry、第40巻、第7号、1704~1711頁(2001年)、Inorganic Chemistry、第41巻、第12号、3055~3066頁(2002年)、New Journal of Chemistry.、第26巻、1171頁(2002年)、European Journal of Organic Chemistry、第4巻、695~709頁(2004年)、更にこれ

らの文献中に記載の参考文献等の方法を適用することにより合成できる。

[0172] 以下に、代表的な化合物の合成例を示す。

[0173] 《例示化合物D-26の合成》

[0174] [化42]



[0175] 窒素雰囲気下で2-フェニル-(2,4,6-トリメチルフェニル)-1H-イミダゾール、18g(0.06861モル)を2-エトキシエタノール350mlに溶解した溶液に、塩化イリジウム3水和物、8.1g(0.

0.2297モル) 及び100mlの水を加え、窒素雰囲気下で5時間還流した。

[0176] 反応液を冷却し、メタノール500mlを加え、析出した結晶を濾取した。得られた結晶を更にメタノールで洗浄し、乾燥後15.2g (収率88.4%)の錯体Aを得た。

[0177] 窒素雰囲気下で錯体A、14.5g (0.009662モル) 及び炭酸ナトリウム、14.5gを2-エトキシエタノール350mlに懸濁させた。この懸濁液にアセチルアセトン3.9g (0.03895モル)を加え、窒素雰囲気下で2時間還流した。

[0178] 反応液を冷却後、減圧濾過によって炭酸ナトリウム及び無機塩を除去した。溶媒を減圧濃縮した後に得られた固体に水1Lを加えて懸濁後、固体を濾取した。

[0179] 得られた結晶を更にメタノール/水=1/1混合溶液で洗浄し、乾燥後14.7g (収率93.6%)の錯体Bを得た。

[0180] 窒素雰囲気下で錯体B、7.5g (0.009214モル) 及び2-フェニル-(2,4,6-トリメチルフェニル)-1H-イミダゾール、6.0g (0.02287モル)をグリセリン400mlに懸濁させた。窒素雰囲気下で反応温度150~160°Cの間で2時間反応させ、錯体Bの消失を確認したところで反応終了とした。

[0181] 反応液を冷却し、メタノール500mlを加え、析出した結晶を濾取した。

[0182] 得られた結晶を更にメタノールで洗浄し、乾燥後収量7.1g (収率78.9%)の粗生成物を得た。この粗生成物を少量の塩化メチレンに溶解し、シカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し(塩化メチレン)6.5g (収率72.2%)の例示化合物D-26を得た。

[0183] 日立製作所製F-4500を用いて測定した例示化合物D-26の溶液におけるリン光発光波長は、466nmであった(2-メチルテトラヒドロフラン中)。

[0184] 《有機EL素子の構成層》

本発明の有機EL素子の構成層について説明する。本発明において、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。

[0185] (i) 陽極／発光層／電子輸送層／陰極

(ii) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極

(iii) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極

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

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

更に、発光層間には非発光性の中間層を有していてもよい。本発明の有機EL素子としては白色発光層であることが好ましく、これらを用いた照明装置であることが好ましい。

[0186] 本発明の有機EL素子を構成する各層について説明する。

[0187] 《電子輸送層》

本発明に係る一般式(1)、(2)、(3)または(4)のいずれかで表される化合物は、本発明の有機EL素子の構成層である少なくとも1層の電子輸送層に含有されるが、本発明の有機EL素子のその他の構成層(後に、詳細に説明する。)に含有されていても良い。

[0188] ここで、電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層もしくは複数層を設けることができる。

[0189] 電子輸送層は陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、電子輸送層の構成材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択し併用することも可能である。

[0190] 電子輸送層に用いられる従来公知の材料(以下、電子輸送材料という)の例としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオ

ピランジオキシド誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体、カルボリン誘導体、または、該カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の炭素原子の少なくとも一つが窒素原子で置換されている環構造を有する誘導体等が挙げられる。

[0191] 更に、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引性基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も電子輸送材料として用いることができる。

[0192] これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

[0193] また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(A1q)、トリス(5,7-ジクロロ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5,7-ジブromo-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(Znq)等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、GaまたはPbに置き替わった金属錯体も電子輸送材料として用いることができる。

[0194] その他、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも電子輸送材料として用いることができる。

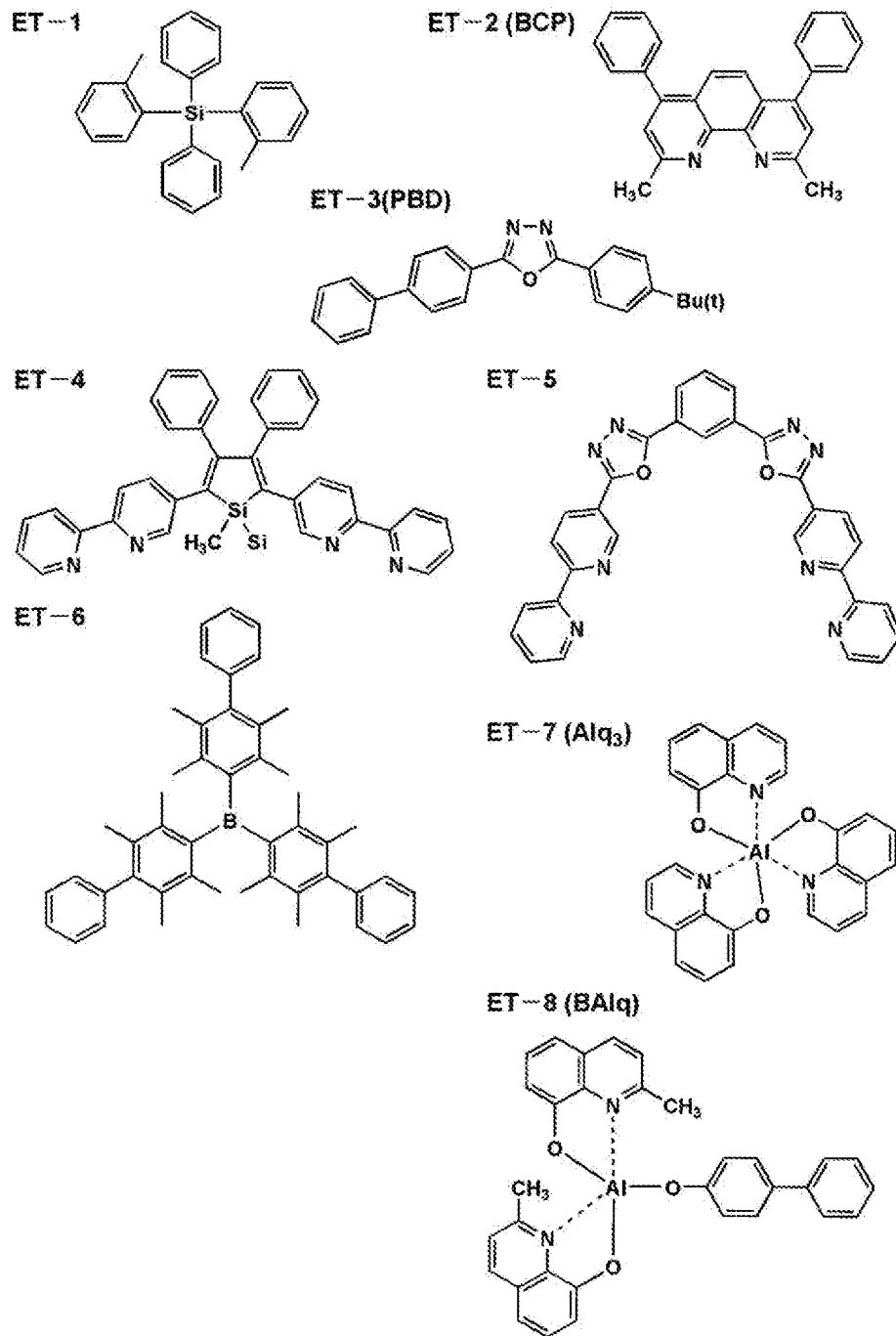
[0195] また、n型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

[0196] また、電子輸送層が陰極に隣接している場合は、電子輸送層に周期表第1族または第2族に属する元素であって、該元素の金属イオン(Mⁿ⁺) / 金属(M)系の標準電極電位が-3V vs. SHEよりも大きい元素の金属また

は金属化合物が含有されていてもよい。

- [0197] 電子輸送層は電子輸送材料を、例えば、真空蒸着法、湿式法（ウェットプロセスともいい、例えば、スピコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法、LB法（ラングミュア・プロジェクト（Langmuir Blodgett法）等を挙げることができる。）等により、薄膜化することにより形成することが好ましい。
- [0198] 有機EL素子の構成層の形成法については、有機EL素子の作製方法のところで詳細に説明する。
- [0199] 電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5 nm～5000 nm程度、好ましくは5 nm～200 nmである。この電子輸送層は上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。
- [0200] 以下、本発明の白色有機EL素子の電子輸送層の形成に好ましく併用される従来公知の化合物（電子輸送材料）の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。
- [0201]

[化43]



[0202] 《発光層》

本発明に係る発光層は、電極または電子輸送層、正孔輸送層から注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

[0203] 発光層の膜厚の総和は特に制限はないが、膜の均質性や、発光時に不必要な高電圧を印加するのを防止し、かつ、駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、2 nm～5 μmの範囲に調整することが好ましく、更に好ましくは2 nm～200 nmの範囲に調整され、特に好ましくは、5 nm～100 nmの範囲である。

[0204] 発光層の作製には、後述する発光ドーパントやホスト化合物を、例えば、真空蒸着法、湿式法（ウェットプロセスともいい、例えば、スピコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法、LB法（ラングミュア・プロジェクト（Langmuir Blodgett法）等を挙げることができる。）等により製膜して形成することができる。（本発明の化合物を発光層に用いる場合、ウェットプロセスで作製することが好ましい。）

本発明の有機EL素子の発光層には、発光ドーパント（リン光発光性ドーパント（リン光ドーパント、リン光発光性ドーパント基ともいう）や蛍光ドーパント等）化合物と、発光ホスト化合物とを含有することが好ましい。

[0205] （発光性ドーパント化合物）

発光性ドーパント化合物（発光ドーパントともいう）について説明する。

[0206] 発光性ドーパントとしては、蛍光ドーパント（蛍光性化合物ともいう）、リン光ドーパント（リン光発光体、リン光性化合物、リン光発光性化合物等ともいう）を用いることができる。

[0207] （リン光ドーパント（リン光発光ドーパントともいう））

本発明に係るリン光ドーパントについて説明する。

[0208] 本発明に係るリン光ドーパント化合物は、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、具体的には室温（25℃）にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、25℃において0.01以上の化合物であると定義されるが、好ましいリン光量子収率は0.1以上である。

[0209] 上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁（19

92年版、丸善)に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に係るリン光ドーパントは、任意の溶媒のいずれかにおいて上記リン光量子収率(0.01以上)が達成されればよい。

[0210] リン光ドーパントの発光は原理としては2種挙げられ、1つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こって発光性ホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光ドーパントに移動させることでリン光ドーパントからの発光を得るというエネルギー移動型、もう1つはリン光ドーパントがキャリアトラップとなり、リン光ドーパント上でキャリアの再結合が起こり、リン光ドーパント化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、リン光ドーパントの励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

[0211] 本発明の有機EL素子は、発光層の少なくともひとつがリン光発光性の有機金属錯体(リン光発光ドーパント、リン光ドーパント等ともいう)を含有するが、該リン光発光性の有機金属錯体としては、本発明に係る一般式(5)、(6)、(7)または(8)のいずれかで表される化合物を含有することが好ましい。

[0212] 更に、本発明に係る一般式(5)、(6)、(7)または(8)のいずれかで表される化合物において、 M_1 は元素周期表における8族~10族の遷移金属元素を表すが、中でもイリジウムが好ましい。

[0213] また、本発明に係る発光層には、以下の特許公報に記載されている化合物等を併用してもよい。

[0214] 例えば、国際公開第00/70655号パンフレット、特開2002-280178号公報、特開2001-181616号公報、特開2002-280179号公報、特開2001-181617号公報、特開2002-280180号公報、特開2001-247859号公報、特開2002-299060号公報、特開2001-313178号公報、特開2002-3

02671号公報、特開2001-345183号公報、特開2002-324679号公報、国際公開第02/15645号パンフレット、特開2002-332291号公報、特開2002-50484号公報、特開2002-332292号公報、特開2002-83684号公報、特表2002-540572号公報、特開2002-117978号公報、特開2002-338588号公報、特開2002-170684号公報、特開2002-352960号公報、国際公開第01/93642号パンフレット、特開2002-50483号公報、特開2002-100476号公報、特開2002-173674号公報、特開2002-359082号公報、特開2002-175884号公報、特開2002-363552号公報、特開2002-184582号公報、特開2003-7469号公報、特表2002-525808号公報、特開2003-7471号公報、特表2002-525833号公報、特開2003-31366号公報、特開2002-226495号公報、特開2002-234894号公報、特開2002-235076号公報、特開2002-241751号公報、特開2001-319779号公報、特開2001-319780号公報、特開2002-62824号公報、特開2002-100474号公報、特開2002-203679号公報、特開2002-343572号公報、特開2002-203678号公報等である。

[0215] (蛍光ドーパント(蛍光性化合物ともいう))

蛍光ドーパントとしては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、または希土類錯体系蛍光体等や、レーザー色素に代表される蛍光量子収率が高い化合物が挙げられる。

[0216] また本発明に係る発光ドーパントは、複数種の化合物を併用して用いてもよく、構造の異なるリン光ドーパント同士の組み合わせや、リン光ドーパント

トと蛍光ドーパントを組み合わせ用いてもよい。

[0217] (発光ホスト化合物 (発光ホスト等ともいう))

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

[0218] 本発明に用いることができる発光ホストとしては、特に制限はなく、従来有機EL素子で用いられる化合物を用いることができる。代表的にはカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体、芳香族誘導体、含窒素複素環化合物、チオフェン誘導体、フラン誘導体、オリゴアリーレン化合物等の基本骨格を有するもの、または、カルボリン誘導体やジアザカルバゾール誘導体(ここで、ジアザカルバゾール誘導体とは、カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の少なくとも1つの炭素原子が窒素原子で置換されているものを表す。)等が挙げられる。

[0219] 本発明に用いることができる公知の発光ホストとしては正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、且つ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_g(ガラス転移温度)である化合物が好ましい。

[0220] また、本発明においては、(本発明の発光ホスト及び/または公知の発光ホスト)を単独で用いてもよく、または複数種併用して用いてもよい。

[0221] 発光ホストを複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。

[0222] また、前記リン光ドーパントとして用いられる公知の化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。

[0223] また、本発明に用いられる発光ホストとしては、低分子化合物でも、繰り返し単位をもつ高分子化合物でもよく、ビニル基やエポキシ基のような重合性基を有する低分子化合物(重合性発光ホスト)でもよく、このような化合

物を一種または複数種用いても良い。

[0224] 公知の発光ホストの具体例としては、以下の文献に記載の化合物が挙げられる。

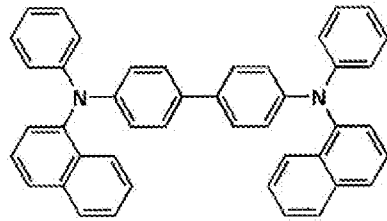
[0225] 特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同2002-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-302516号公報、同2002-305083号公報、同2002-305084号公報、同2002-308837号公報等。

[0226] 以下、本発明の有機EL素子の発光層の発光ホストとして用いられる具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

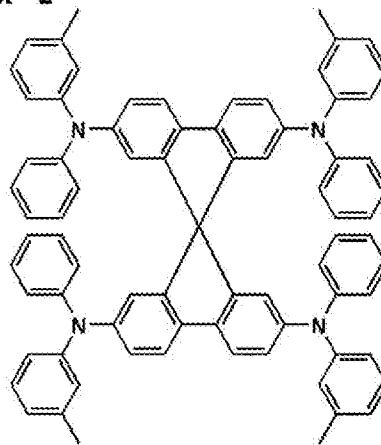
[0227]

[化44]

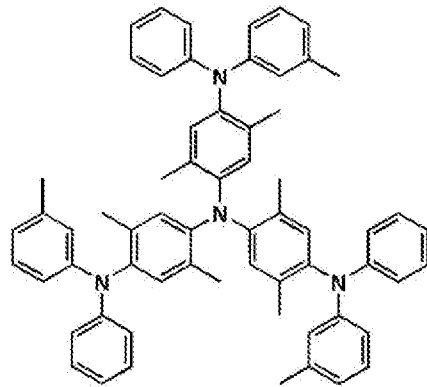
Host-1



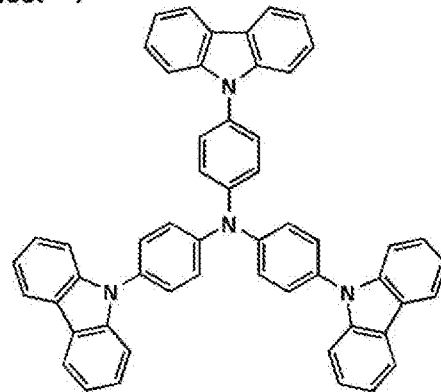
Host-2



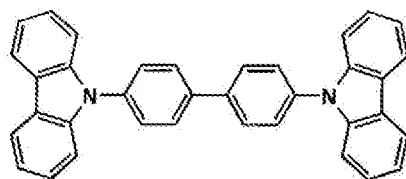
Host-3



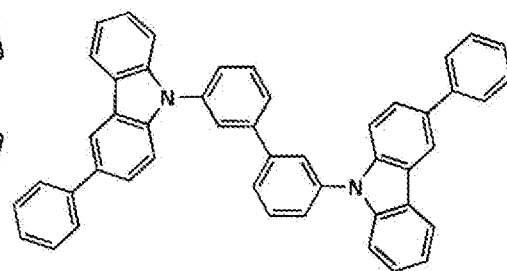
Host-4



Host-5



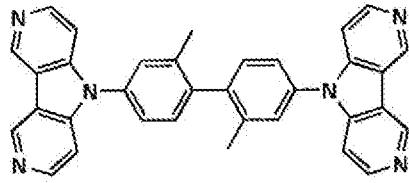
Host-6



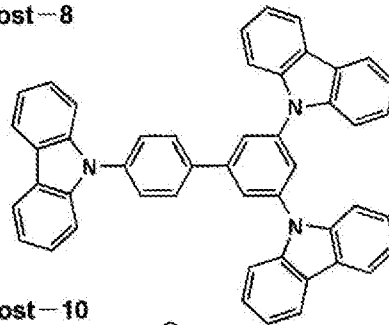
[0228]

[化45]

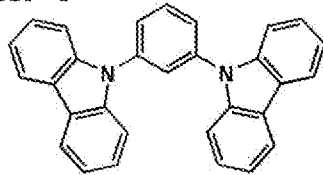
Host-7



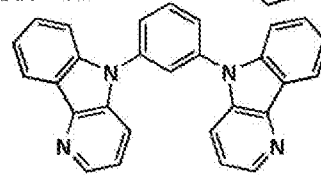
Host-8



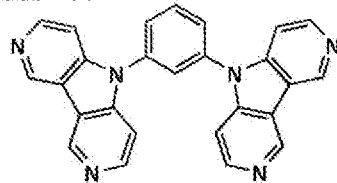
Host-9



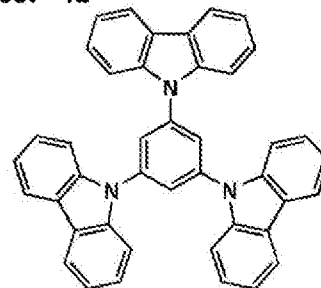
Host-10



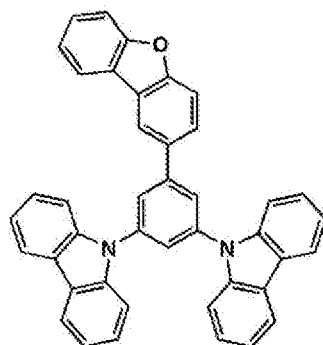
Host-11



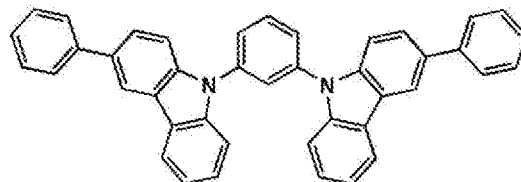
Host-12



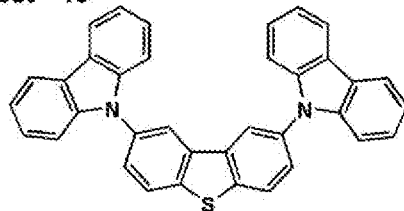
Host-13



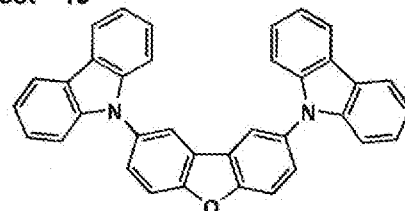
Host-14



Host-15



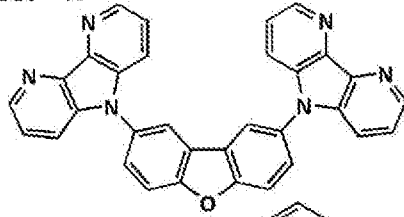
Host-16



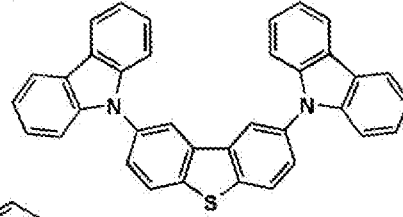
[0229]

[化46]

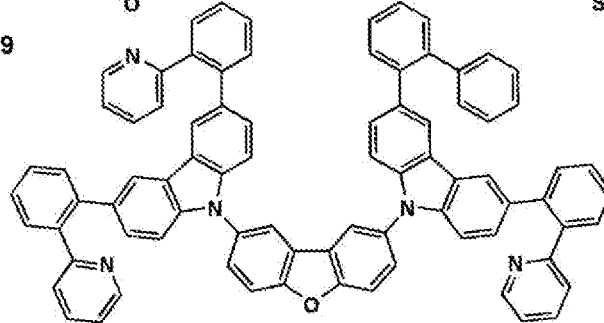
Host-17



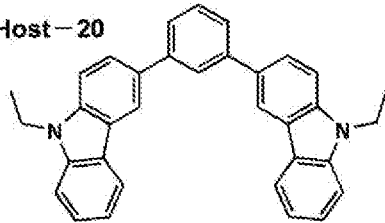
Host-18



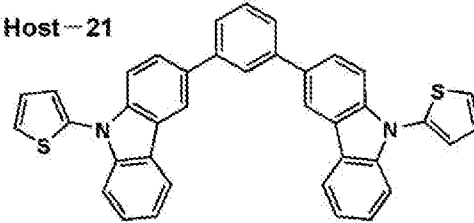
Host-19



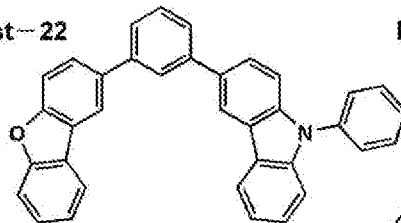
Host-20



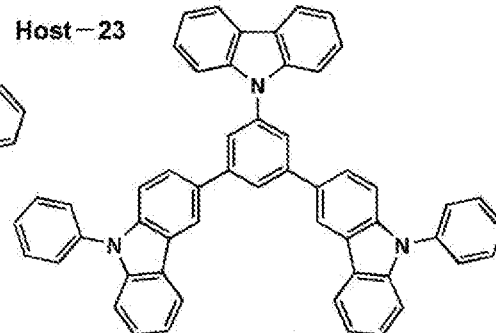
Host-21



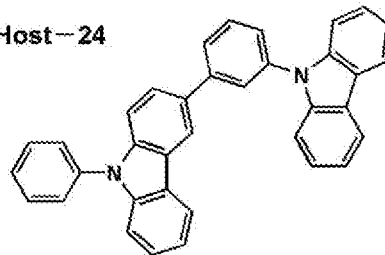
Host-22



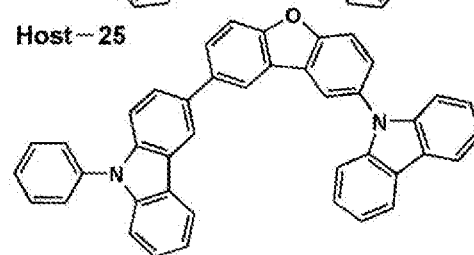
Host-23



Host-24



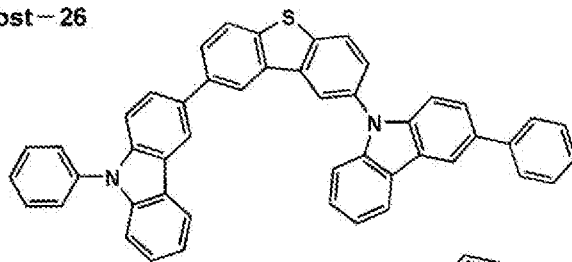
Host-25



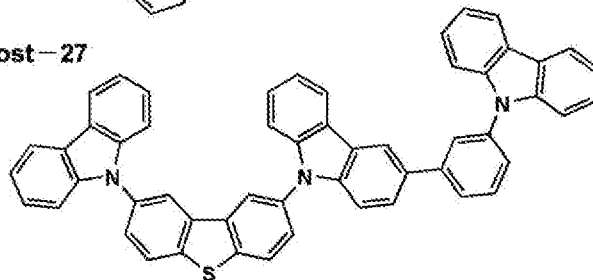
[0230]

[化47]

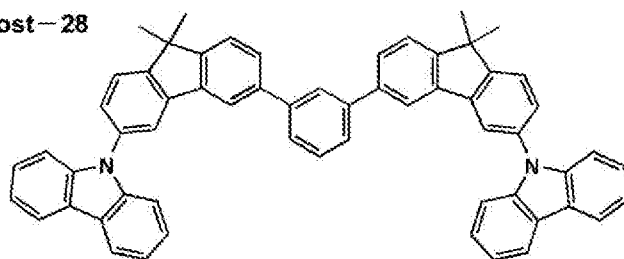
Host-26



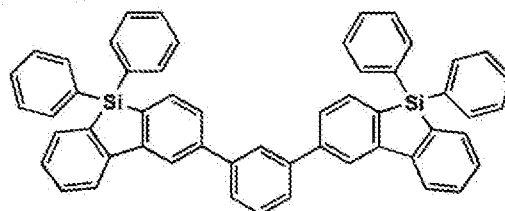
Host-27



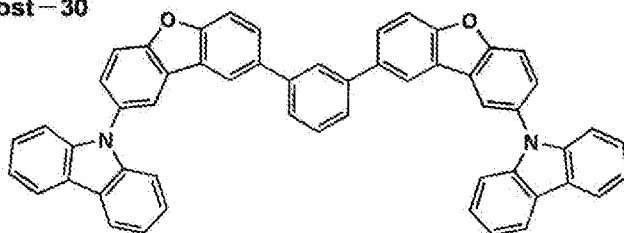
Host-28



Host-29



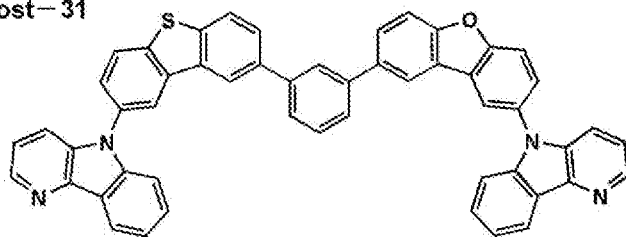
Host-30



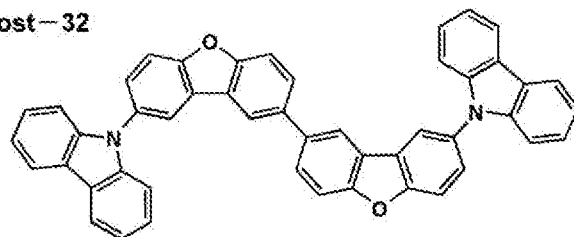
[0231]

[化48]

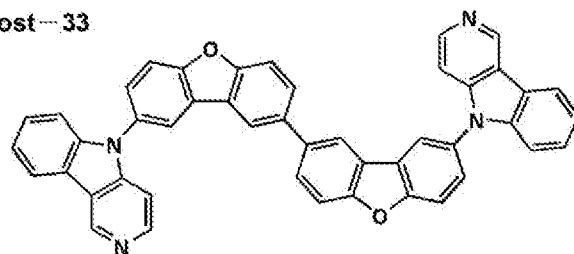
Host-31



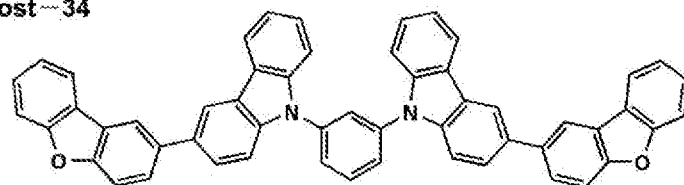
Host-32



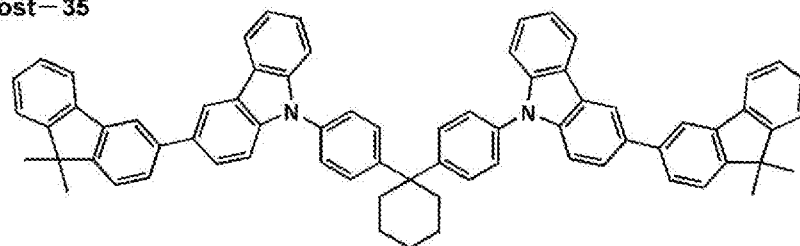
Host-33



Host-34



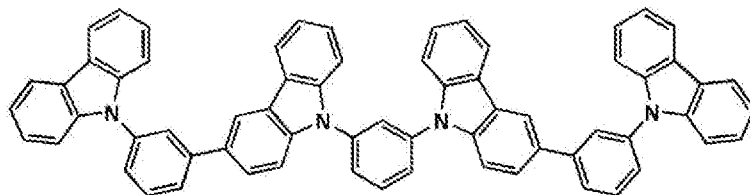
Host-35



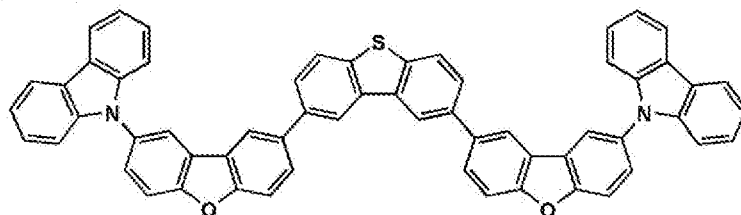
[0232]

[化49]

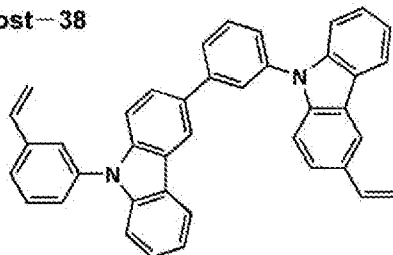
Host-36



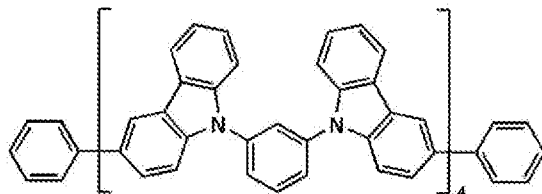
Host-37



Host-38

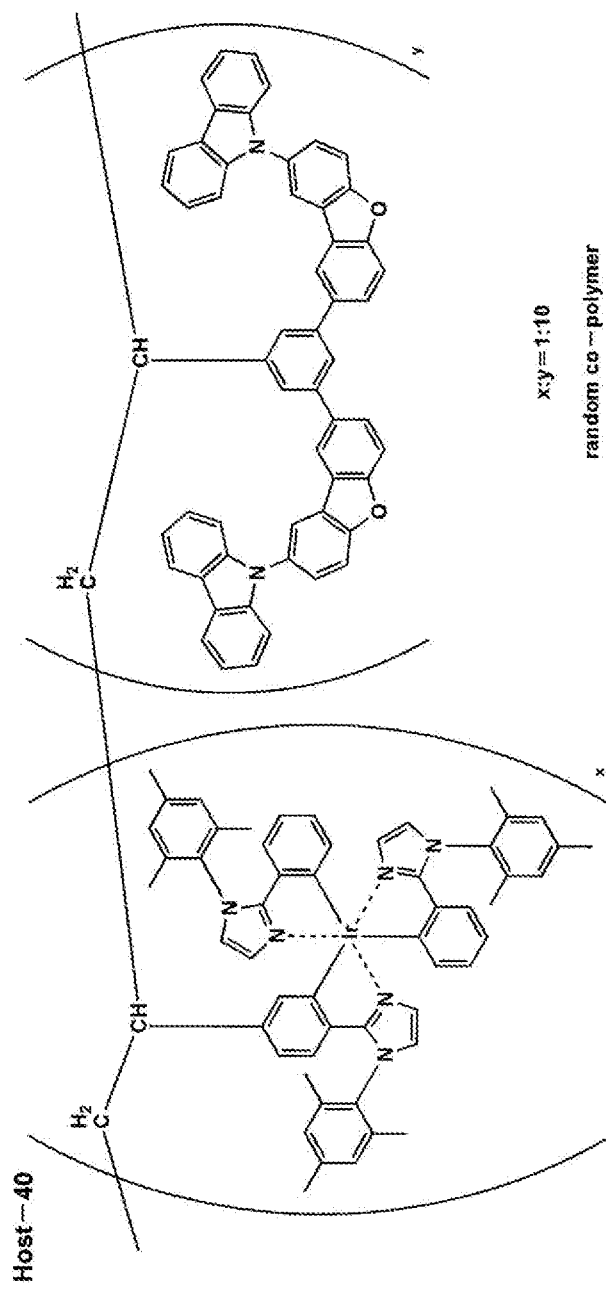


Host-39



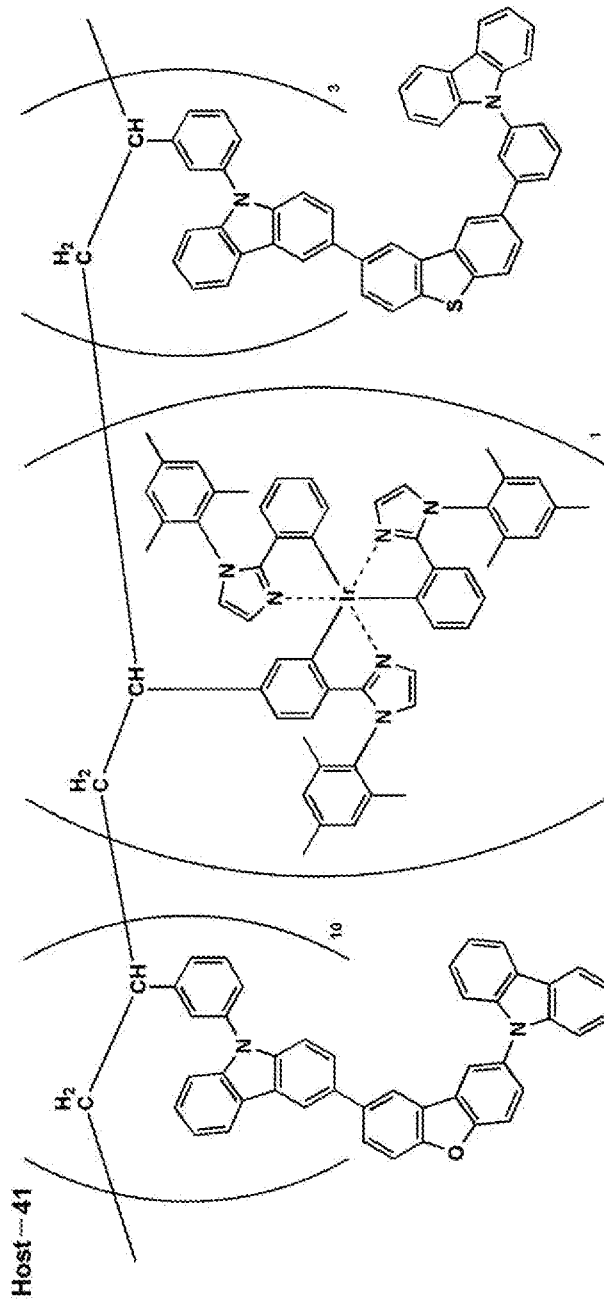
[0233]

[化50]



[0234]

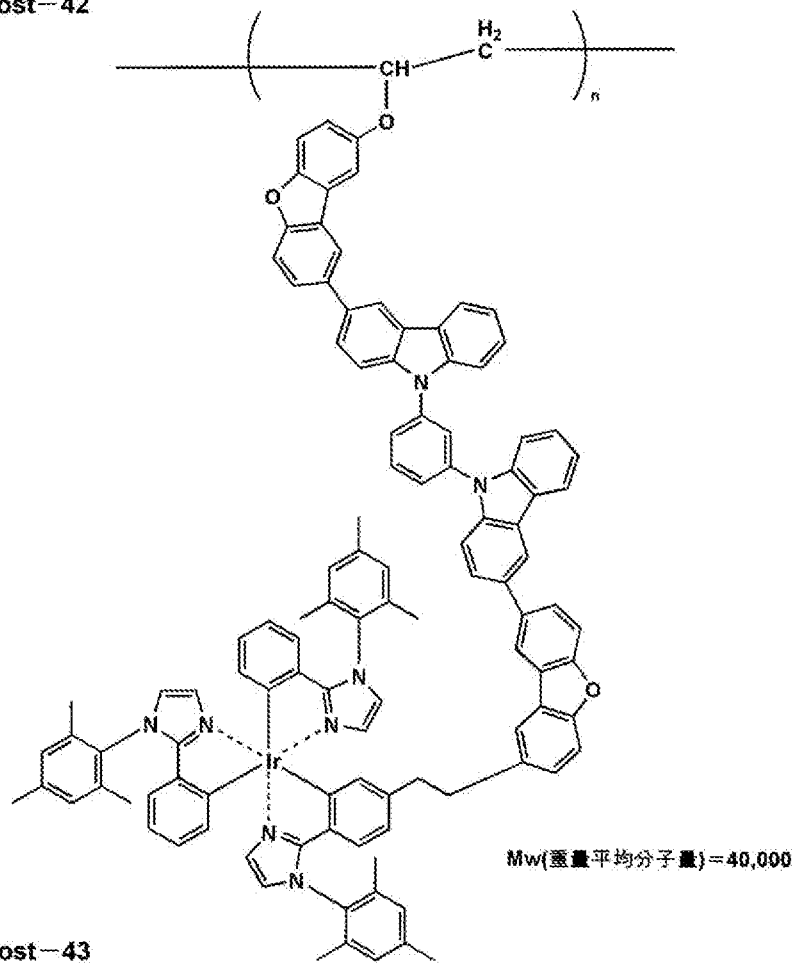
[化51]



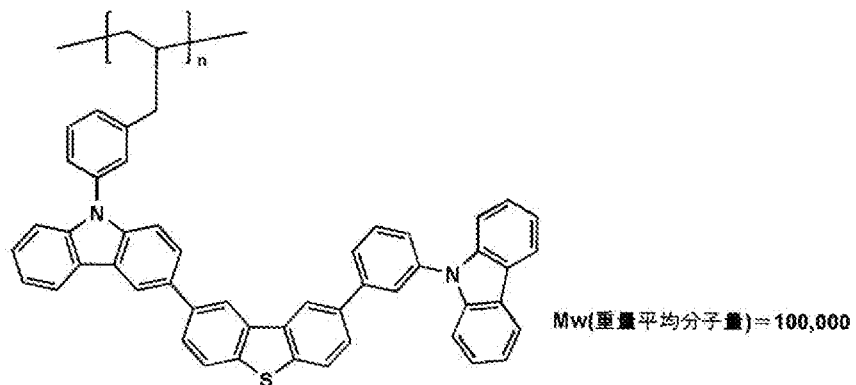
[0235]

[化52]

Host-42



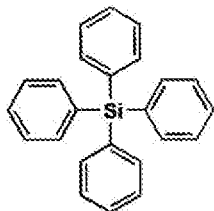
Host-43



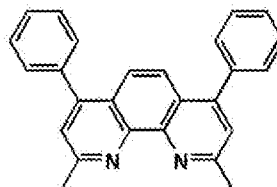
[0236]

[化53]

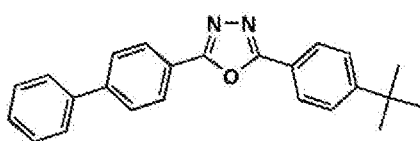
Host-44



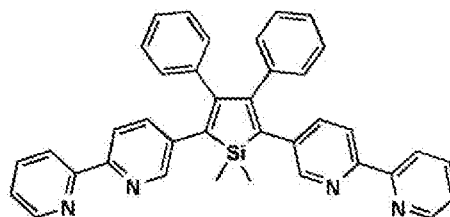
Host-45



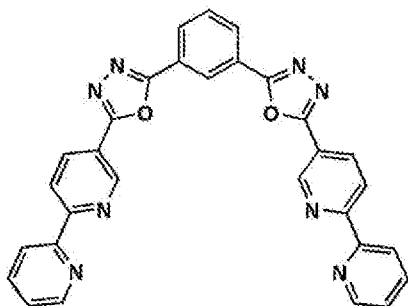
Host-46



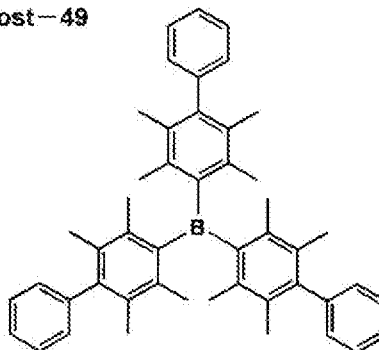
Host-47



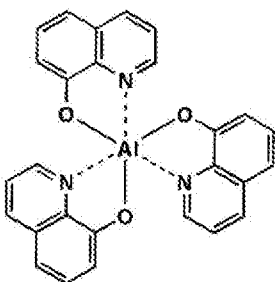
Host-48



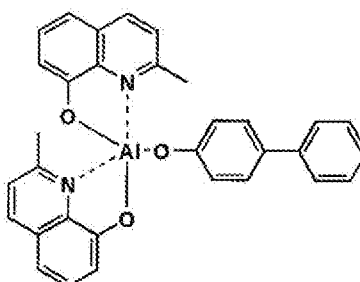
Host-49



Host-50



Host-51



[0237] 《陰極》

一方、陰極としては仕事関数の小さい（4 eV以下）金属（電子注入性金属と称する）、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混

合物、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム (Al_2O_3) 混合物、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。

[0238] 本発明においてはこれらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属である周期表第1族または第2族に属する元素であって、該元素の金属イオン (M^{n+}) / 金属 (M) 系の標準電極電位が $-3 V$ vs. SHE よりも大きい元素の金属または金属化合物とこれより仕事関数の値が大きく安定な周期表第1族また第2族以外に属する元素の金属である第二金属との混合物、または第二金属のみ、例えば、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、カリウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が用いられる。

[0239] 陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 Ω / \square 以下が好ましく、膜厚は通常 $10\text{ nm} \sim 5\ \mu\text{m}$ 、好ましくは $50\text{ nm} \sim 200\text{ nm}$ の範囲で選ばれる。尚、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

[0240] また、陰極に上記金属を $1\text{ nm} \sim 20\text{ nm}$ の膜厚で作製した後に、陽極の説明で挙げた導電性透明材料をその上に作製することで、透明または半透明の陰極を作製することができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有する素子を作製することができる。

[0241] 《注入層：電子注入層（陰極バッファ層）、正孔注入層》

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

[0242] 注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月

30日エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されており、正孔注入層（陽極バッファ層）と電子注入層（陰極バッファ層）とがある。

- [0243] 陽極バッファ層（正孔注入層）は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。
- [0244] 陰極バッファ層（電子注入層）は、ストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層、フッ化カリウムやフッ化カルシウムに代表される周期表第1族または第2族に属する元素であって、該元素の金属イオン（ M^{n+} ）／金属（M）系の標準電極電位が $-3V$ vs. SHEよりも大きい元素の金属または金属化合物のバッファ層等が挙げられる。
- [0245] 上記バッファ層（注入層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるがその膜厚は $0.1nm \sim 5\mu m$ の範囲が好ましい。
- [0246] 本発明の有機EL素子においては、上記の陰極または陰極に接する構成層（例えば、電子注入層（陰極バッファ層））中に、周期表の第1族または第2族に属する元素であり、該元素の金属イオン（ M^{n+} ）／金属（M）系の標準電極電位が $-3V$ vs. SHEよりも大きい元素の金属または金属化合物を含有することが特徴である。
- [0247] ここで、金属化合物とは、塩化物や錯体、金属有機化合物などをいう。
- [0248] 本発明に係る M^{n+} ／M系の標準電極電位 E° は、温度 $25^\circ C$ 、溶質の活量がすべて1の水溶液中における、標準水素電極に対する電極電位であり、例えば「改定第3版 化学便覧 基礎編II」（日本化学会編）のII-474ページ、表12・46の値を参考にできる。
- [0249] また、本発明に係る、周期表の第1族または第2族に属する元素であり、

該元素の金属イオン (M^{n+}) / 金属 (M) 系の標準電極電位が -3 V vs. SHE よりも大きい元素の金属または金属化合物を構成する元素としては、具体的には、K (-2.925 (V))、Ca (-2.840 (V))、Na (-2.714 (V))、Mg (-2.356 (V))、Cs (-2.923 (V)) 等を挙げることができる。特に、電子注入性及び安定性の観点から K、Na、Cs が好ましい。

[0250] 《阻止層：正孔阻止層、電子阻止層》

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

[0251] 正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有し、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

[0252] また、後述する電子輸送層の構成を必要に応じて、本発明に係わる正孔阻止層として用いることができる。

[0253] 本発明の有機 EL 素子の正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられていることが好ましい。

[0254] 正孔阻止層には、前述のホスト化合物として挙げた、カルバゾール誘導体、カルボリン誘導体、ジアザカルバゾール誘導体 (ここで、ジアザカルバゾール誘導体とは、カルボリン環を構成する炭素原子のいずれかひとつが窒素原子で置き換わったものを示す) を含有することが好ましい。

[0255] また、本発明においては、複数の発光色の異なる複数の発光層を有する場合、その発光極大波長が最も短波にある発光層が、全発光層中、最も陽極に近いことが好ましいが、このような場合、該最短波層と該層の次に陽極に近い発光層との間に正孔阻止層を追加して設けることが好ましい。更には、該

位置に設けられる正孔阻止層に含有される化合物の50質量%以上が、前記最短波発光層のホスト化合物に対しそのイオン化ポテンシャルが 0.3 eV 以上大きいことが好ましい。

[0256] イオン化ポテンシャルは化合物のHOMO（最高占有軌道）レベルにある電子を真空準位に放出するのに必要なエネルギーで定義され、例えば下記に示すような方法により求めることができる。

[0257] (1) 米国Gaussian社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるGaussian98（Gaussian98、Revision A.11.4, M. J. Frisch, et al, Gaussian, Inc., Pittsburgh PA, 2002.）を用い、キーワードとしてB3LYP/6-31G*を用いて構造最適化を行うことにより算出した値（eV単位換算値）として求めることができる。この計算値が有効な背景には、この手法で求めた計算値と実験値の相関が高いためである。

[0258] (2) イオン化ポテンシャルは光電子分光法で直接測定する方法により求めることもできる。例えば、理研計器社製の低エネルギー電子分光装置「Model AC-1」を用いて、あるいは紫外光電子分光として知られている方法を好適に用いることができる。

[0259] 一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層の機能を有し、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

[0260] また、後述する正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。本発明に係る正孔阻止層、電子輸送層の膜厚としては、好ましくは $3\text{ nm}\sim 100\text{ nm}$ であり、更に好ましくは $5\text{ nm}\sim 30\text{ nm}$ である。

[0261] 《正孔輸送層》

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層

または複数層設けることができる。

[0262] 正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。

[0263] 例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

[0264] 正孔輸送材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第3級アミン化合物を用いることが好ましい。

[0265] 芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル; N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル) - [1, 1' -ビフェニル] -4, 4' -ジアミン(TPD); 2, 2-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N' -テトラ-*p*-トリル-4, 4' -ジアミノビフェニル; 1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル) -4-フェニルシクロヘキサン; ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N' -ジフェニル-N, N' -ジ(4-メトキシフェニル) -4, 4' -ジアミノビフェニル; N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4' -ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(*p*-トリル)アミン; 4-(ジ-*p*-トリルアミノ) -4' - [4-(ジ-*p*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフ

エニルビニル) ベンゼン; 3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノ
スチルベンゼン; N-フェニルカルバゾール、更には米国特許第5, 061
, 569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4'-ビス [N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]
ビフェニル (NPD)、特開平4-308688号公報に記載されている
トリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4'
, 4"-トリス [N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ] トリ
フェニルアミン (MTDATA) 等が挙げられる。

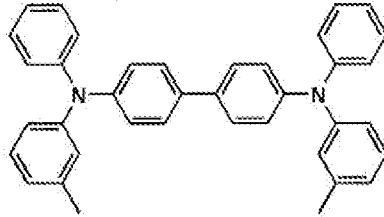
- [0266] 更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。
- [0267] また、p型-Si、p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。
- [0268] また、特開平11-251067号公報、J. Huang et al. 著文献 (Applied Physics Letters 80 (2002), p. 139) に記載されているような、所謂p型正孔輸送材料を用いることもできる。本発明においては、より高効率の発光素子が得られることからこれらの材料を用いることが好ましい。
- [0269] 正孔輸送層は上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。
- [0270] 正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5nm~200nmである。この正孔輸送層は上記材料の一種または2種以上からなる一層構造であってもよい。
- [0271] また、不純物をドーピングしたp性の高い正孔輸送層を用いることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報の各公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004) 等に記載されたものが挙げられる。
- [0272] 本発明においては、このようなp性の高い正孔輸送層を用いることが、よ

り低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

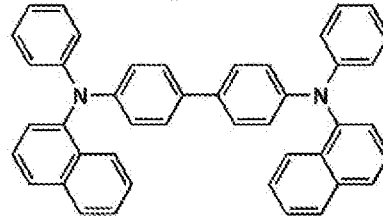
[0273] 以下、本発明の有機EL素子の正孔輸送層の形成に好ましく用いられる化合物の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

[0274] [化54]

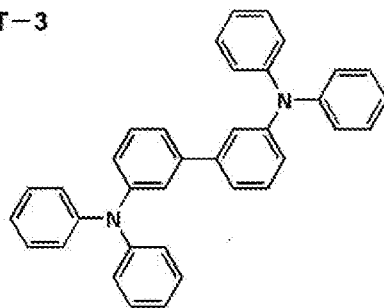
HT-1 (TPD)



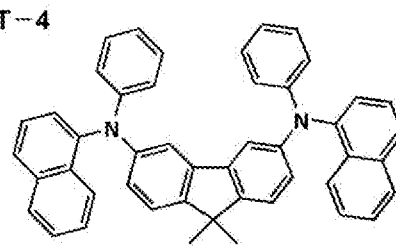
HT-2 (α -NPD)



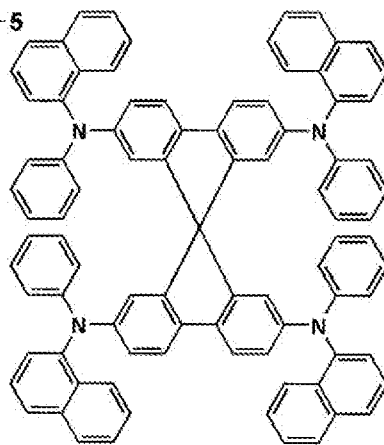
HT-3



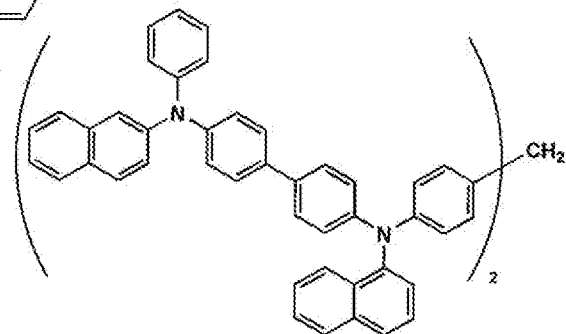
HT-4



HT-5

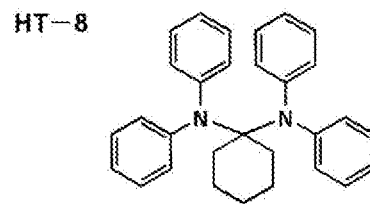
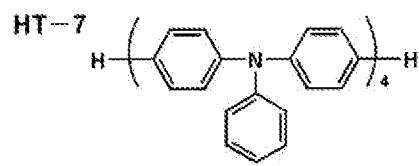


HT-6

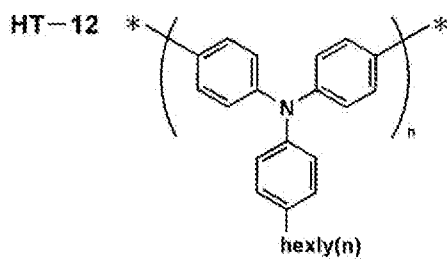
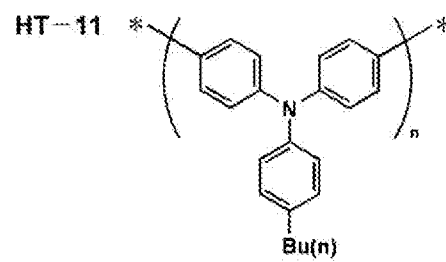
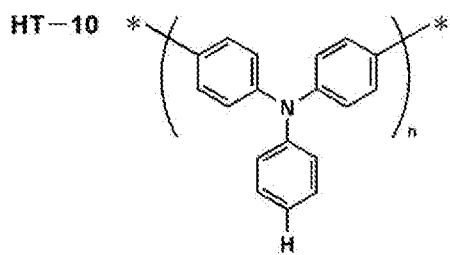
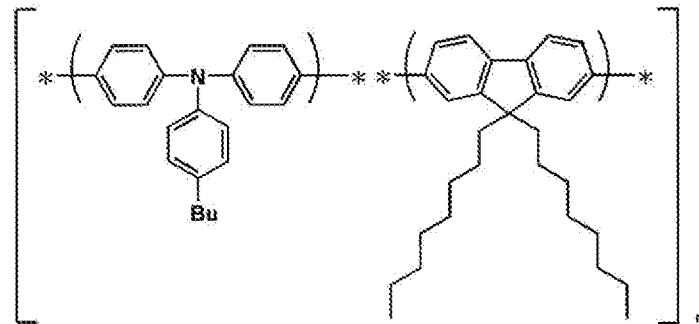


[0275]

[化55]

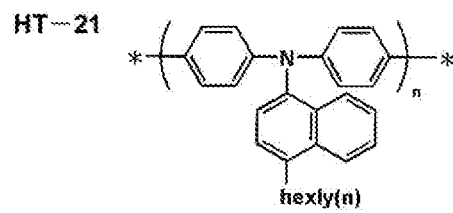
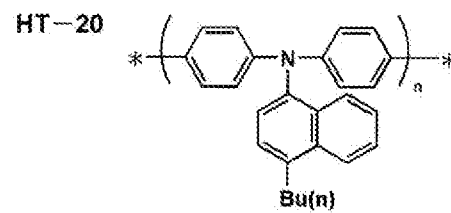
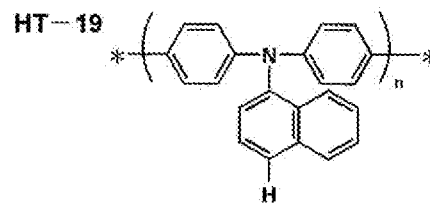
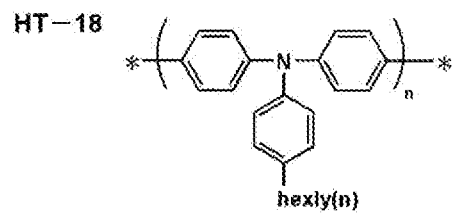
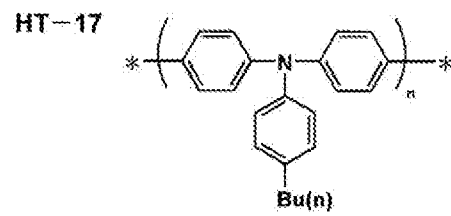
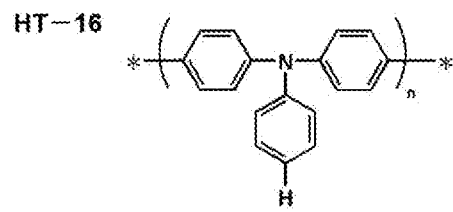
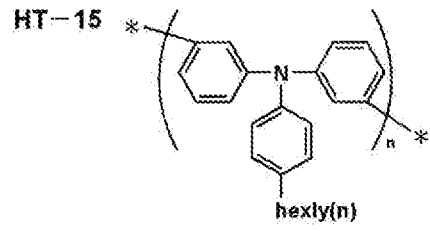
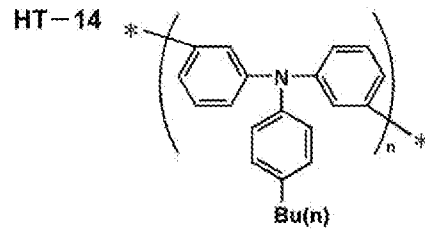
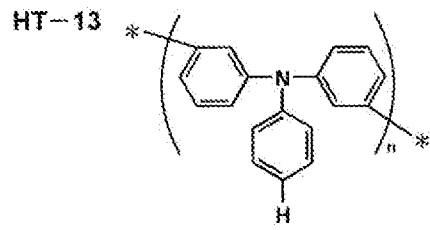


HT-9 (F8-TFB)



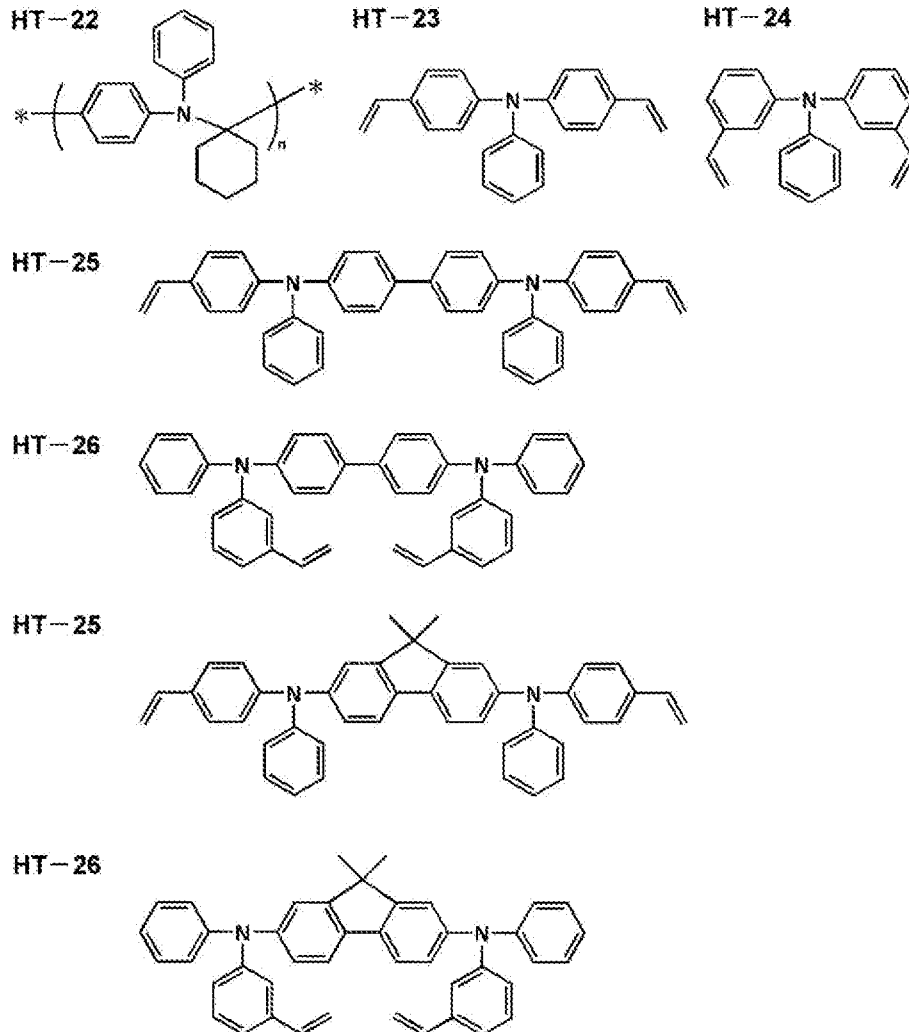
[0276]

[化56]



[0277]

[化57]



[0278] 《陽極》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、インジウムチンオキシド（ITO）、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。

[0279] また、IDIXO（In₂O₃-ZnO）等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパタ

ーンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は（ $100\mu\text{m}$ 以上程度）、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。

[0280] あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な物質を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を 10% より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましい。

[0281] 更に膜厚は材料にもよるが、通常 $10\text{nm}\sim 1000\text{nm}$ 、好ましくは $10\text{nm}\sim 200\text{nm}$ の範囲で選ばれる。

[0282] 《支持基板》

本発明の有機EL素子に用いることのできる支持基板（以下、基体、基板、基材、支持体等とも言う）としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また透明であっても不透明であってもよい。支持基板側から光を取り出す場合には、支持基板は透明であることが好ましい。好ましく用いられる透明な支持基板としては、ガラス、石英、透明樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい支持基板は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

[0283] 樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）等のポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロファン、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）、セルロースアセテートフタレート（TAC）、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類またはそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン

、ポリメチルメタクリレート、アクリルあるいはポリアリレート類、アトソン（商品名JSR社製）あるいはアペル（商品名三井化学社製）といったシクロオレフィン系樹脂等を挙げられる。

[0284] 樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよく、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度（ 90 ± 2 ）%RH）が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のバリア性フィルムであることが好ましく、更には、JIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が、 $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

[0285] バリア膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。更に該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることがより好ましい。無機層と有機層の積層順については特に制限はないが、両者を交互に複数回積層させることが好ましい。

[0286] バリア膜の形成方法については特に限定はなく、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができるが、特開2004-68143号公報に記載されているような大気圧プラズマ重合法によるものが特に好ましい。

[0287] 不透明な支持基板としては、例えば、アルミ、ステンレス等の金属板、フィルムや不透明樹脂基板、セラミック製の基板等が挙げられる。

[0288] 本発明の有機EL素子の発光の室温における外部取り出し効率は、1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。

[0289] ここに、外部取り出し量子効率（%）＝有機EL素子外部に発光した光子

数／有機EL素子に流した電子数×100である。

[0290] また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。色変換フィルターを用いる場合においては、有機EL素子の発光の λ_{max} は480nm以下が好ましい。

[0291] 《有機EL素子の製造方法》

有機EL素子の製造方法の一例として、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層（電子注入層）／陰極からなる素子の製造方法について説明する。

[0292] まず、適当な基体上に所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を1 μ m以下、好ましくは10nm～200nmの膜厚になるように形成させ、陽極を作製する。

[0293] 次に、この上に素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、陰極バッファ層等の有機化合物を含有する薄膜を形成させる。

[0294] 湿式法としては、スピコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法、LB法等があるが、精密な薄膜が形成可能で、且つ高生産性の点から、ダイコート法、ロールコート法、インクジェット法、スプレーコート法などのロール・ツー・ロール方式適性の高い方法が好ましい。また、層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。

[0295] 本発明に係る有機EL材料を溶解または分散する液媒体としては、例えば、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、酢酸エチル等の脂肪酸エステル類、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族炭化水素類、シクロヘキサン、デカリン、ドデカン等の脂肪族炭化水素類、DMF、DMSO等の有機溶媒を用いることができる。

[0296] また、分散方法としては、超音波、高剪断力分散やメディア分散等の分散

方法により分散することができる。

[0297] これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を1 μm 以下、好ましくは50 nm~200 nmの範囲の膜厚になるように形成させ、陰極を設けることにより所望の有機EL素子が得られる。

[0298] また、順序を逆にして、陰極、陰極バッファ層、電子輸送層、正孔阻止層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。

[0299] このようにして得られた多色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には陽極を+、陰極を-の極性として電圧2 V~40 V程度を印加すると発光が観測できる。また交流電圧を印加してもよい。尚、印加する交流の波形は任意でよい。

[0300] 本発明の有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施しても構わない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行うことが好ましい。

[0301] 《封止》

本発明に用いられる封止手段としては、例えば、封止部材と電極、支持基板とを接着剤で接着する方法を挙げることができる。

[0302] 封止部材としては、有機EL素子の表示領域を覆うように配置されておればよく、凹板状でも平板状でもよい。また透明性、電気絶縁性は特に問わない。

[0303] 具体的には、ガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。

[0304] また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネ

シウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブテン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。

- [0305] 本発明においては、素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム、金属フィルムを好ましく使用することができる。
- [0306] 更には、ポリマーフィルムは、JIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度 ($25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 (90 ± 2) %RH) が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のものであることが好ましい。
- [0307] 封止部材を凹状に加工するのは、サンドブラスト加工、化学エッチング加工等が使われる。
- [0308] 接着剤として具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化及び熱硬化型接着剤、2-シアノアクリル酸エステル等の湿気硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系等の熱及び化学硬化型（二液混合）を挙げることができる。また、ホットメルト型のポリアミド、ポリエステル、ポリオレフィンを挙げることができる。また、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂接着剤を挙げることができる。
- [0309] なお、有機EL素子が熱処理により劣化する場合があるので、室温から 80°C までに接着硬化できるものが好ましい。また、前記接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。封止部分への接着剤の塗布は市販のディスペンサーを使ってもよいし、スクリーン印刷のように印刷してもよい。
- [0310] また、有機層を挟み支持基板と対向する側の電極の外側に該電極と有機層を被覆し、支持基板と接する形で無機物、有機物の層を形成し封止膜とすることも好適にできる。この場合、該膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。

[0311] 更に、該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることが好ましい。これらの膜の形成方法については、特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができる。

[0312] 封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相及び液相では、窒素、アルゴン等の不活性気体やフッ化炭化水素、シリコンオイルのような不活性液体を注入することが好ましい。また真空とすることも可能である。また、内部に吸湿性化合物を封入することもできる。

[0313] 吸湿性化合物としては、例えば、金属酸化物（例えば、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム等）、硫酸塩（例えば、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸コバルト等）、金属ハロゲン化物（例えば、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、フッ化セシウム、フッ化タンタル、臭化セリウム、臭化マグネシウム、沃化バリウム、沃化マグネシウム等）、過塩素酸類（例えば、過塩素酸バリウム、過塩素酸マグネシウム等）等が挙げられ、硫酸塩、金属ハロゲン化物及び過塩素酸類においては無水塩が好適に用いられる。

[0314] 《保護膜、保護板》

有機層を挟み支持基板と対向する側の前記封止膜、あるいは前記封止用フィルムの外側に、素子の機械的強度を高めるために保護膜、あるいは保護板を設けてもよい。特に封止が前記封止膜により行われている場合には、その機械的強度は必ずしも高くないため、このような保護膜、保護板を設けることが好ましい。これに使用することができる材料としては、前記封止に用いたのと同様なガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等を用いることができるが、軽量且つ薄膜化ということからポリマーフィルムを用い

ることが好ましい。

[0315] 《光取り出し》

有機EL素子は空気よりも屈折率の高い（屈折率が1.7～2.1程度）層の内部で発光し、発光層で発生した光のうち15%から20%程度の光しか取り出せないことが一般的に言われている。これは、臨界角以上の角度 θ で界面（透明基板と空気との界面）に入射する光は、全反射を起こし素子外部に取り出すことができないことや、透明電極ないし発光層と透明基板との間で光が全反射を起こし、光が透明電極ないし発光層を導波し、結果として光が素子側面方向に逃げるためである。

[0316] この光の取り出しの効率を向上させる手法としては、例えば、透明基板表面に凹凸を形成し、透明基板と空気界面での全反射を防ぐ方法（米国特許第4,774,435号明細書）、基板に集光性を持たせることにより効率を向上させる方法（特開昭63-314795号公報）、素子の側面等に反射面を形成する方法（特開平1-220394号公報）、基板と発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法（特開昭62-172691号公報）、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法（特開2001-202827号公報）、基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間（含む、基板と外界間）に回折格子を形成する方法（特開平11-283751号公報）等がある。

[0317] 本発明においては、これらの方法を本発明の有機EL素子と組み合わせて用いることができるが、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法、あるいは基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間（含む、基板と外界間）に回折格子を形成する方法を好適に用いることができる。

[0318] 本発明はこれらの手段を組み合わせることにより、更に高輝度あるいは耐久性に優れた素子を得ることができる。

[0319] 透明電極と透明基板の間に低屈折率の媒質を光の波長よりも長い厚みで形成すると、透明電極から出てきた光は、媒質の屈折率が低いほど外部への取

り出し効率が高くなる。

[0320] 低屈折率層としては、例えば、エアロゲル、多孔質シリカ、フッ化マグネシウム、フッ素系ポリマー等が挙げられる。透明基板の屈折率は一般に1.5～1.7程度であるので、低屈折率層は屈折率がおよそ1.5以下であることが好ましい。また、更に1.35以下であることが好ましい。

[0321] また、低屈折率媒質の厚みは媒質中の波長の2倍以上となるのが望ましい。これは低屈折率媒質の厚みが、光の波長程度になってエバネッセントで染み出した電磁波が基板内に入り込む膜厚になると、低屈折率層の効果が薄れるからである。

[0322] 全反射を起こす界面もしくはいずれかの媒質中に回折格子を導入する方法は、光取り出し効率の向上効果が高いという特徴がある。この方法は回折格子が1次の回折や2次の回折といった所謂ブラッグ回折により、光の向きを屈折とは異なる特定の向きに変えることができる性質を利用して、発光層から発生した光のうち層間での全反射等により外に出ることができない光を、いずれかの層間もしくは、媒質中（透明基板内や透明電極内）に回折格子を導入することで光を回折させ、光を外に取り出そうとするものである。

[0323] 導入する回折格子は、二次元的な周期屈折率を持っていることが望ましい。これは発光層で発光する光はあらゆる方向にランダムに発生するので、ある方向にのみ周期的な屈折率分布を持っている一般的な1次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。

[0324] しかしながら、屈折率分布を二次元的な分布にすることにより、あらゆる方向に進む光が回折され、光の取り出し効率が上がる。

[0325] 回折格子を導入する位置としては前述の通り、いずれかの層間もしくは媒質中（透明基板内や透明電極内）でもよいが、光が発生する場所である有機発光層の近傍が望ましい。

[0326] このとき、回折格子の周期は媒質中の光の波長の約 $1/2 \sim 3$ 倍程度が好ましい。

[0327] 回折格子の配列は正方形のラチス状、三角形のラチス状、ハニカムラチス状等、2次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

[0328] 《集光シート》

本発明の有機EL素子は基板の光取り出し側に、例えば、マイクロレンズアレイ状の構造を設けるように加工する、または、所謂集光シートと組み合わせることにより、特定方向、例えば、素子発光面に対し正面方向に集光することにより、特定方向上の輝度を高めることができる。

[0329] マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一辺が30 μ mでその頂角が90度となるような四角錐を2次元に配列する。一辺は10 μ m~100 μ mが好ましい。これより小さくなると回折の効果が発生して色付く、大きすぎると厚みが厚くなり好ましくない。

[0330] 集光シートとしては、例えば、液晶表示装置のLEDバックライトで実用化されているものを用いることが可能である。このようなシートとして、例えば、住友スリーエム社製輝度上昇フィルム（BEF）等を用いることができる。

[0331] プリズムシートの形状としては、例えば、基材に頂角90度、ピッチ50 μ mの Δ 状のストライプが形成されたものであってもよいし、頂角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であってもよい。

[0332] また、発光素子からの光放射角を制御するために、光拡散板・フィルムを集光シートと併用してもよい。例えば、（株）きもと製拡散フィルム（ライトアップ）等を用いることができる。

[0333] 《用途》

本発明の有機EL素子は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。発光光源として、例えば、照明装置（家庭用照明、車内照明）、時計や液晶用バックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではないが、特に液晶表示装置のバック

ライト、照明用光源としての用途に有効に用いることができる。

- [0334] 本発明の有機EL素子においては、必要に応じ成膜時にメタルマスクやインクジェットプリンティング法等でパターンニングを施してもよい。パターンニングする場合は、電極のみをパターンニングしてもよいし、電極と発光層をパターンニングしてもよいし、素子全層をパターンニングしてもよく、素子の作製においては、従来公知の方法を用いることができる。
- [0335] 本発明の有機EL素子や本発明に係る化合物の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩学会編、東京大学出版会、1985）の108頁の図4. 16において、分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタセンシング（株）製）で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。
- [0336] また、本発明の有機EL素子が白色素子の場合には、白色とは、2度視野角正面輝度を上記方法により測定した際に、 1000 cd/m^2 でのCIE 1931表色系における色度が $X=0.33\pm 0.07$ 、 $Y=0.33\pm 0.1$ の領域内にあることを言う。
- [0337] 《表示装置》
本発明の表示装置について説明する。本発明の表示装置は、本発明の有機EL素子を具備したものである。
- [0338] 本発明の表示装置は単色でも多色でもよいが、ここでは多色表示装置について説明する。多色表示装置の場合は発光層形成時のみシャドーマスクを設け、一面に蒸着法、キャスト法、スピコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。
- [0339] 発光層のみパターンニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、インクジェット法、スピコート法、印刷法である。
- [0340] 表示装置に具備される有機EL素子の構成は、必要に応じて上記の有機EL素子の構成例の中から選択される。
- [0341] また、有機EL素子の製造方法は、上記の本発明の有機EL素子の製造の一態様に示したとおりである。

- [0342] 得られた多色表示装置に直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として電圧 2 V～40 V 程度を印加すると発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。更に交流電圧を印加する場合には、陽極が＋、陰極が－の状態になったときのみ発光する。尚、印加する交流の波形は任意でよい。
- [0343] 多色表示装置は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。表示デバイス、ディスプレイにおいて、青、赤、緑発光の 3 種の有機 EL 素子を用いることによりフルカラーの表示が可能となる。
- [0344] 表示デバイス、ディスプレイとしては、テレビ、パソコン、モバイル機器、AV 機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。
- [0345] 発光光源としては家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。
- [0346] 以下、本発明の有機 EL 素子を有する表示装置の一例を図面に基づいて説明する。
- [0347] 図 1 は有機 EL 素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。有機 EL 素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。
- [0348] ディスプレイ 1 は複数の画素を有する表示部 A、画像情報に基づいて表示部 A の画像走査を行う制御部 B 等からなる。
- [0349] 制御部 B は表示部 A と電氣的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部 A に表示する。

- [0350] 図2は表示部Aの模式図である。
- [0351] 表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。
- [0352] 図においては、画素3の発光した光が白矢印方向（下方向）へ取り出される場合を示している。
- [0353] 配線部の走査線5及び複数のデータ線6はそれぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している（詳細は図示していない）。
- [0354] 画素3は走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。
- [0355] 発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を適宜同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。
- [0356] 次に、画素の発光プロセスを説明する。
- [0357] 図3は画素の模式図である。
- [0358] 画素は有機EL素子10、スイッチングトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデンサ13等を備えている。複数の画素に有機EL素子10として、赤色、緑色、青色発光の有機EL素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。
- [0359] 図3において、制御部Bからデータ線6を介してスイッチングトランジスタ11のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部Bから走査線5を介してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。
- [0360] 画像データ信号の伝達により、コンデンサ13が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トランジスタ12は、ドレインが電源ライン7に接続され、ソースが有機EL素子10の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の

電位に応じて電源ライン7から有機EL素子10に電流が供給される。

[0361] 制御部Bの順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフしてもコンデンサ13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機EL素子10の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機EL素子10が発光する。

[0362] 即ち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子10に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動トランジスタ12を設けて、複数の画素3それぞれの有機EL素子10の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

[0363] ここで、有機EL素子10の発光は複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。また、コンデンサ13の電位の保持は次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

[0364] 本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみデータ信号に応じて有機EL素子が発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。

[0365] 図4はパッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。図4において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に設けられている。

[0366] 順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。

[0367] パッシブマトリクス方式では画素3にアクティブ素子が無く、製造コスト

の低減が計れる。

[0368] 《照明装置》

本発明の照明装置について説明する。本発明の照明装置は上記有機EL素子を有する。

[0369] 本発明の有機EL素子に共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよく、このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるが、これらに限定されない。また、レーザー発振をさせることにより上記用途に使用してもよい。

[0370] また、本発明の有機EL素子は照明用や露光光源のような一種のランプとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像を直接視認するタイプの表示装置（ディスプレイ）として使用してもよい。

[0371] 動画再生用の表示装置として使用する場合は、単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。または、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を2種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。

[0372] また、本発明の有機EL材料は照明装置として、実質白色の発光を生じる有機EL素子に適用できる。複数の発光材料により複数の発光色を同時に発光させて混色により白色発光を得る。複数の発光色の組み合わせとしては、青色、緑色、青色の3原色の3つの発光極大波長を含有させたものでもよいし、青色と黄色、青緑と橙色等の補色の関係を利用した2つの発光極大波長を含有したものでもよい。

[0373] また複数の発光色を得るための発光材料の組み合わせは、複数のリン光または蛍光で発光する材料を複数組み合わせたもの、蛍光またはリン光で発光する発光材料と、発光材料からの光を励起光として発光する色素材料との組み合わせたもののいずれでもよいが、本発明に係る白色有機EL素子においては、発光ドーパントを複数組み合わせ混合するだけでよい。

- [0374] 発光層、正孔輸送層あるいは電子輸送層等の形成時のみマスクを設け、マスクにより塗り分ける等単純に配置するだけでよく、他層は共通であるのでマスク等のパターンニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で例えば電極膜を形成でき、生産性も向上する。
- [0375] この方法によれば、複数色の発光素子をアレー状に並列配置した白色有機EL装置と異なり、素子自体が発光白色である。
- [0376] 発光層に用いる発光材料としては特に制限はなく、例えば、液晶表示素子におけるバックライトであれば、CF（カラーフィルター）特性に対応した波長範囲に適合するように、本発明に係る金属錯体、また公知の発光材料の中から任意のものを選択して組み合わせることで白色化すればよい。
- [0377] 《本発明の照明装置の一態様》
本発明の有機EL素子を具備した、本発明の照明装置の一態様について説明する。
- [0378] 本発明の有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300 μ mのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラックストラックLC0629B）を適用し、これを陰極上に重ねて透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して、硬化させて、封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成することができる。
- [0379] 図5は、照明装置の概略図を示し、本発明の有機EL素子101はガラスカバー102で覆われている（尚、ガラスカバーでの封止作業は、有機EL素子101を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度99.999%以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った。）。
- [0380] 図6は、照明装置の断面図を示し、図6において、105は陰極、106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板を示す。
- [0381] 尚、ガラスカバー102内には窒素ガス108が充填され、捕水剤109が設けられている。

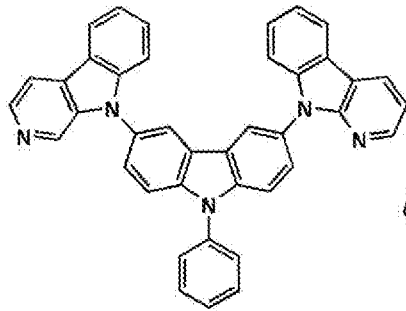
実施例

[0382] 以下、実施例により本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されない。

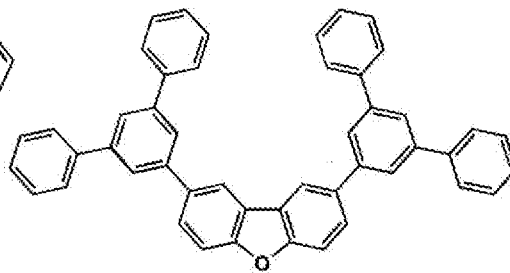
[0383] また、実施例に用いる化合物の構造を以下に示す。

[0384] [化58]

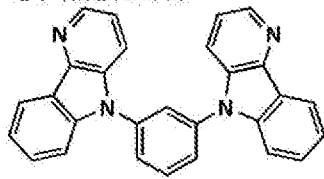
電子輸送化合物1



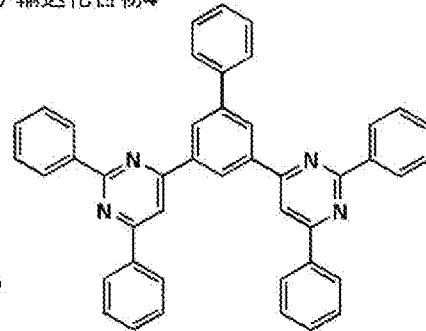
電子輸送化合物2



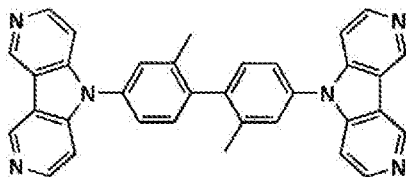
電子輸送化合物3



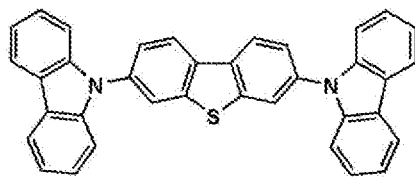
電子輸送化合物4



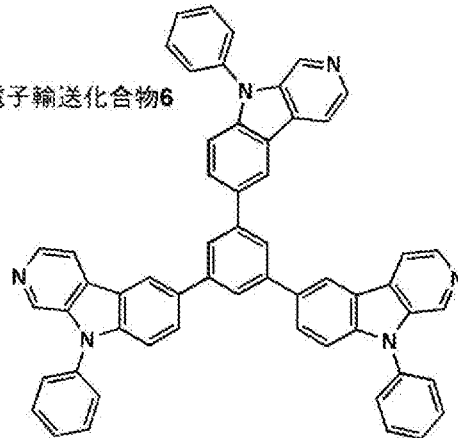
電子輸送化合物5



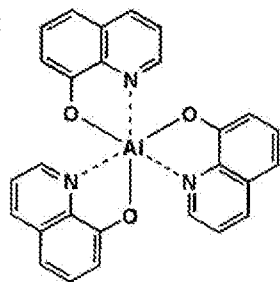
電子輸送化合物7



電子輸送化合物6

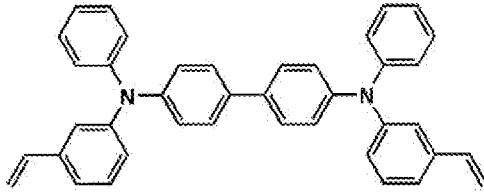


Alq₃

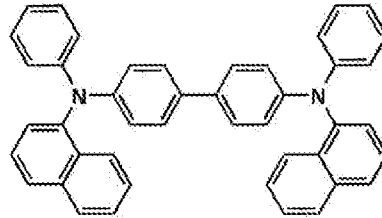


[0385] [化59]

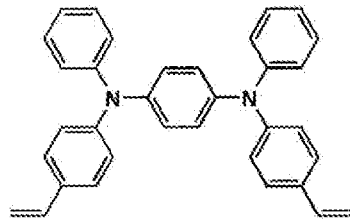
正孔输送材料1



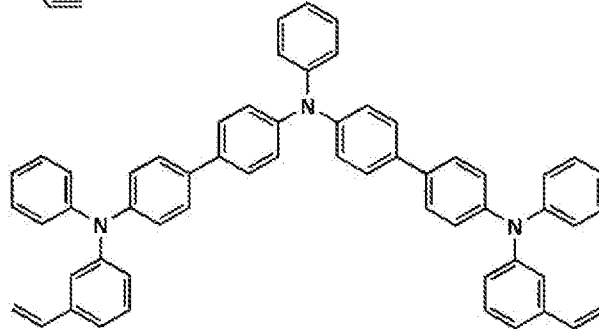
正孔输送材料2



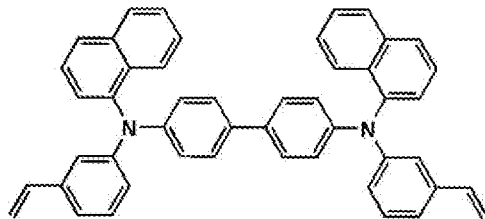
正孔输送材料3



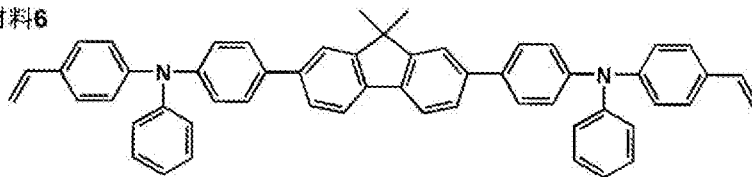
正孔输送材料4



正孔输送材料5



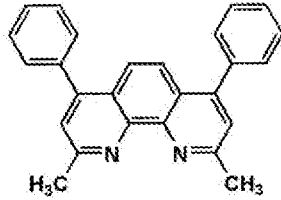
正孔输送材料6



[0386]

[化60]

BCP



[0387] 実施例 1

《有機EL素子1-1の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板の上にITO（インジウムチンオキシド）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA-45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

[0388] この透明支持基板の上に、ポリ（3，4-エチレンジオキシチオフェン）-ポリスチレンスルホネート（PEDOT/PSS、Bayer社製、Baytron PA14083）を純水で70%に希釈した溶液を用い、3000rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚20nmの正孔輸送層を設けた。

[0389] この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、50mgの正孔輸送材料1を10mlのトルエンに溶解した溶液を1500rpm、30秒の条件で正孔輸送層上にスピコーティングし、薄膜を形成した。更に180秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行い、膜厚約20nmの第2正孔輸送層とした。

[0390] この第2正孔輸送層上に、100mgのHost-24と10mgのD-1を10mlのトルエンに溶解した溶液を用いて600rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した。60℃で1時間真空乾燥し、膜厚約70nmの発光層とした。

[0391] 次にこの発光層上に、50 mgの電子輸送化合物1を10 mlのヘキサフルオロイソプロパノール(HFIP)に溶解した溶液を用いて、1000 rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した。更に60°Cで1時間真空乾燥し、膜厚約30 nmの電子輸送層とした。

[0392] 続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、陰極バッファ層としてフッ化ナトリウムを0.4 nm、更に陰極としてアルミニウムを110 nm蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-1を作製した。

[0393] 《有機EL素子1-2~1-4の作製》

有機EL素子1-1の作製において、電子輸送化合物1を下記に化合物に変えた以外は同様にして、有機EL素子1-2~1-4を作製した。

[0394] 《有機EL素子1-1~1-4の評価》

得られた有機EL素子1-1~1-4を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスカバーで覆い、ガラスカバーと有機EL素子が作製されたガラス基板とが接触するガラスカバー側の周囲にシール剤としてエポキシ系光硬化型接着剤(東亜合成社製ラクストラックLC0629B)を適用し、これを上記陰極側に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して硬化させ、封止して、上記の図5、図6に示すような照明装置を形成し、次いで、下記の測定法に従って、経時保存性の評価を行った。

[0395] (経時安定性)

各有機EL素子を85°Cで24時間保存した後、保存前後における 2.5 mA/cm^2 の定電流駆動での各電圧を測定し、各電圧比を下式に従って求め、これを経時安定性の尺度とした。

[0396] 経時安定性(%) = 保存後の電圧(2.5 mA/cm^2) / 保存前の電圧(2.5 mA/cm^2) $\times 100$

得られた結果を下記に示す。

[0397] 有機EL素子 電子輸送性材料 経時安定性 備考

		(%)	
1-1	電子輸送化合物 1	147	比較例
1-2	47	123	本発明
1-3	45	119	本発明
1-4	1	114	本発明

上記から、比較の素子に比べて、本発明の有機EL素子は保存後の電圧の上昇が抑制されており、経時安定性（保存性）に優れていることが明らかである。

[0398] 実施例 2

《有機EL素子 2-1 の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板の上にITO（インジウムチンオキsid）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

[0399] この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方モリブデン製抵抗加熱ポートに正孔輸送材料 2（NPD）を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにホスト化合物としてHost-34を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにD-25を入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ポートに電子輸送化合物 2 を入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

[0400] 次いで真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、正孔輸送材料 2 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で透明支持基板上に蒸着し、正孔輸送層を設けた。更にHost-34とD-25の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、各々蒸着速度0.2nm/秒、0.012nm/秒で前記正孔輸送層上に共蒸着して発光層を設けた。

[0401] 尚、蒸着時の基板温度は室温であった。更に、電子輸送化合物 2 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で前記発光層の

上に蒸着して電子輸送層を設けた。尚、蒸着時の基板温度は室温であった。

[0402] 引き続き、フッ化カリウム0.5 nm及びアルミニウム110 nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子2-1を作製した。

[0403] 《有機EL素子2-2～2-4の作製》

有機EL素子2-1の作製において、電子輸送化合物2を下記の化合物に変えた以外は同様にして、有機EL素子2-2～2-4を作製した。

[0404] 《有機EL素子2-1～2-4の評価》

得られた有機EL素子2-1～2-4を評価するに際しては、実施例1の有機EL素子1-1～1-4と同様に封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成して評価した。

[0405] 以下のようにして得られた有機EL素子の評価を行い、その結果を表2に示す。

[0406] 〈経時安定性〉

有機EL素子を60℃、70%RHの条件で一ヶ月保存後、実施例1と同様に保存前後における2.5 mA/cm²の定電流駆動での各電圧を測定し、各電圧比を下式に従って求め、これを経時安定性の尺度とした。

[0407] 経時安定性 (%) = 保存後の電圧 (2.5 mA/cm²) / 保存前の電圧 (2.5 mA/cm²) × 100

得られた結果を以下に示す。

有機EL素子	電子輸送性材料	経時安定性 (%)	備考
2-1	電子輸送化合物2	136	比較例
2-2	41	121	本発明
2-3	40	116	本発明
2-4	36	110	本発明

上記から、比較の素子に比べて、本発明の有機EL素子は、保存後の電圧の上昇が抑制されており、経時安定性（保存性）に優れていることが明らかである。

[0409] 実施例 3

《有機EL素子3-1の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板の上にITO（インジウムチンオキシド）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

[0410] この透明支持基板の上に、ポリ（3，4-エチレンジオキシチオフェン）-ポリスチレンスルホネート（PEDOT/PSS、Bayer社製、Baytron PAI 4083）を純水で70%に希釈した溶液を用い、3000rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚20nmの正孔輸送層を設けた。

[0411] この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方モリブデン製抵抗加熱ポートに正孔輸送材料2（NPD）を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにホスト化合物としてHost-30を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにD-26を入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ポートに電子輸送化合物3を入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

[0412] 次に、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、正孔輸送材料2の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で正孔輸送層上に蒸着し、正孔輸送層2を設けた。

[0413] 更に、Host-30とD-26の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.2nm/秒、0.012nm/秒で前記正孔輸送層2上に共蒸着して発光層を設けた。

[0414] 尚、蒸着時の基板温度は室温であった。更に、電子輸送化合物3の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で前記発光層の上に蒸着して電子輸送層を設けた。尚、蒸着時の基板温度は室温であった。

[0415] 引き続き、フッ化カリウム0.5nm及びアルミニウム110nmを蒸着

して陰極を形成し、有機EL素子3-1を作製した。

[0416] 《有機EL素子3-2~3-4の作製》

有機EL素子3-1の作製において、電子輸送化合物3を下記の化合物に変えた以外は同様にして、有機EL素子3-2~3-4を作製した。

[0417] 《有機EL素子3-1~3-4の評価》

得られた有機EL素子3-1~3-4を評価するに際しては、有機EL素子1-1~1-4と同様に封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成して評価した。

[0418] 以下のようにして、得られた有機EL素子の評価を行った。

[0419] (外部取り出し量子効率)

有機EL素子を室温(約23°C~25°C)下、2.5mA/cm²の定電流条件下で発光させ、発光開始直後の発光輝度(L)[cd/m²]を測定することにより外部取り出し量子効率(η)を算出した。

[0420] ここで、発光輝度の測定はCS-1000(コニカミノルタセンシング製)を用いた。外部取り出し量子効率は有機EL素子3-1を100とする相対値で表した。

[0421] (発光寿命)

有機EL素子を室温下、2.5mA/cm²の定電流条件下による連続発光を行い、初期輝度の半分の輝度になるのに要する時間(τ^{1/2})を測定した。発光寿命は有機EL素子3-1を100と設定する相対値で表した。

[0422] 得られた結果を下記に示す。

有機EL素子	電子輸送性材料	外部取り出し量子効率(%)	寿命	備考
3-1	電子輸送化合物3	100	100	比較例
3-2	42	124	330	本発明
3-3	43	123	410	本発明
3-4	27	127	500	本発明

上記から、比較の素子に比べて、本発明の有機EL素子は外部取り出し量

子効率が高く、寿命も長いことが明らかである。

[0424] 実施例 4

《有機 EL 素子 4-1 の作製》

有機 EL 素子 1-1 の作製において、正孔輸送材料 1 の代わりに正孔輸送材料 3 を 5 mg と正孔輸送材料 4 を 45 mg とを 10 ml のトルエンに溶解した混合溶液を用い、Host-24 の代わりに Host-25 を用い、D-1 の代わりに D-30 を用い、更に電子輸送化合物 1 の代わりに BCP を用いた以外は同様にして、有機 EL 素子 4-1 を作製した。

[0425] 《有機 EL 素子 4-2 ~ 4-5 の作製》

有機 EL 素子 4-1 の作製において、BCP を下記の化合物に変えた以外は同様にして、有機 EL 素子 4-1 ~ 4-5 を作製した。

[0426] 《有機 EL 素子 4-1 ~ 4-5 の評価》

得られた有機 EL 素子 4-1 ~ 4-5 を評価するに際しては、有機 EL 素子 1-1 ~ 1-4 と同様に封止し、図 5、図 6 に示すような照明装置を形成して評価した。

[0427] 以下のようにして、得られた有機 EL 素子の評価を行った。

[0428] (発光輝度)

各有機 EL 素子に室温 (約 23°C ~ 25°C) 下、4 V 直流電圧を印加した時の発光輝度 (cd/m^2) を測定した。

[0429] (外部取り出し量子効率)

実施例 3 の有機 EL 素子 3-1 ~ 3-4 の場合と同様にして 2.5 mA / cm^2 の定電流条件下における外部取り出し量子効率を求めた。

[0430] 尚、評価にあたり、発光輝度及び外部取り出し量子効率は有機 EL 素子 4-1 を 100 とする相対値で表した。

[0431] (電圧上昇率)

6 mA / cm^2 の一定電流で駆動したときに、初期電圧と 150 時間後の電圧を測定した。初期電圧に対する 100 時間後の電圧の相対値を電圧上昇率とした。

[0432] 得られた結果を下記に示す。

有機EL素子	電子輸送性材料	外部取り出し量子効率 (%)	寿命	電圧上昇率	備考
4-1	BCP	100	100	122	比較例
4-2	電子輸送化合物4	114	164	120	比較例
4-3	44	127	365	114	本発明
4-4	38	129	410	112	本発明
4-5	29'	138	555	111	本発明

上記から、比較の素子に比べて、本発明の有機EL素子は外部取り出し量子効率が高く、寿命も長く、且つ、電圧上昇率も低いことが明らかである。

[0433] 実施例5

《有機EL素子5-1の作製》

有機EL素子1-1の作製において、Host-24をHost-9に代え、D-1をD-24に代え、電子輸送化合物1を電子輸送化合物5に代え、フッ化ナトリウムの代わりにフッ化リチウムを用いた以外は同様にして、有機EL素子5-1を作製した。

[0434] 《有機EL素子5-2~5-5の作製》

有機EL素子5-1の作製において、フッ化リチウムと電子輸送性材料を下記の組み合わせに代えた以外は同様にして、有機EL素子5-2~5-5を各々作製した。

[0435] 《有機EL素子5-1~5-5の評価》

得られた有機EL素子5-1~5-5を評価するに際しては、有機EL素子1-1~1-4と同様に封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成して評価した。

[0436] 作製した素子について、実施例3の有機EL素子3-1~3-4と同様にして2.5mA/cm²の定電流条件下における外部取り出し量子効率及び電圧を求めた。

[0437] 尚、評価にあたり、有機EL素子5-1の結果を各々100とする相対値

で表した。

有機EL素子	電子輸送性材料	電子注入層	外部取り出し量子効率 (%)	電圧上昇率	備考
5-1	電子輸送化合物5	LiF	100	100	比較例
5-2	46	LiF	110	86	比較例
5-3	電子輸送化合物5	KF	105	62	比較例
5-4	46	KF	117	45	本発明
5-5	2	KF	119	43	本発明

尚、上記の電子注入層の形成に用いられたLiF、KFを構成する金属元素の標準電極電位を以下に示す。

[0438] Li -3.045 (V) : 比較例

K -2.925 (V) : 本発明

上記から、比較の素子に比べて、本発明の有機EL素子は外部取り出し量子効率が高く、且つ、電圧上昇率も低いことが明らかである。

[0439] 実施例6

《有機EL素子6-1の作製》

有機EL素子3-1の作製において、Host-30をHost-25に代え、D-26をD-9に代え、電子輸送化合物3を電子輸送化合物6に代えた以外は同様にして、有機EL素子6-1を作製した。

[0440] 《有機EL素子6-2~6-4の作製》

有機EL素子6-1の作製において、D-9と電子輸送化合物6を下記の組み合わせに代えた以外は同様にして、有機EL素子6-2~6-4を作製した。

[0441] 《有機EL素子6-1~6-4の評価》

得られた有機EL素子6-1~6-4を評価するに際しては、有機EL素子1-1~1-4と同様に封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成して評価した。

[0442] 作製した素子について、実施例3の有機EL素子3-1~3-4と同様に

して2. 5 mA/cm^2 の定電流条件下における外部取り出し量子効率及び発光寿命を求めた。

[0443] また、2. 5 mA/cm^2 の定電流条件下における連続発光を行った際の発光色を目視で評価した。それぞれ有機EL素子6-1の結果を100とする相対値で表した。

[0444] 得られた結果を下記に示す。

有機EL素子	ドーパント	電子輸送性材料	外部取り出し量子効率 (%)	寿命	発光色	備考
6-1	D-9	電子輸送化合物6	100	100	青	比較例
6-2	D-9	24	109	150	青	本発明
6-3	D-24	24	113	680	青	本発明
6-4	D-26	24	123	4500	青	本発明

上記から、比較に比べて、本発明の有機EL素子は、外部取り出し量子効率が高く、長寿命であることが判った。

[0445] 実施例7

《有機EL素子7-1の作製》

有機EL素子1-1の作製において、Host-24をHost-15に代え、D-1をD-10に代え、電子輸送化合物1を電子輸送化合物4に代えた以外は同様にして、有機EL素子7-1を作製した。

[0446] 《有機EL素子7-2及び7-3の作製》

有機EL素子7-1の作製において、ホスト化合物と電子輸送性材料の組み合わせを下記に変えた以外は同様にして、有機EL素子7-2及び7-3を作製した。

[0447] 《有機EL素子7-1～7-3の評価》

得られた有機EL素子7-1～7-3を評価するに際しては、有機EL素子1-1～1-4と同様に封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成して評価した。

[0448] 作製した素子について、実施例3の有機EL素子3-1～3-4と同様に

して2.5 mA/cm²の定電流条件下における部取り出し量子効率及び発光寿命を求めた。

[0449] 尚、評価にあたり、有機EL素子7-1のデータを各々100とする相対値で表した。

[0450] 得られた結果を下記に示す。

有機EL素子	ホスト化合物	電子輸送性材料	外部取り出し量子効率 (%)	寿命	備考
7-1	Host-15	電子輸送化合物4	100	100	比較例
7-2	Host-15	37	130	350	本発明
7-3	Host-16	37	134	720	本発明

上記から、比較に比べて、本発明の有機EL素子は、外部取り出し量子効率が高く、長寿命であることが判った。

[0451] 実施例8（白色素子の作製）

《有機ELフルカラー表示装置の作製》

図7は有機ELフルカラー表示装置の概略構成図を示す。陽極としてガラス基板201上にITO透明電極（202）を100nm成膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）に100μmのピッチでパターニングを行った後、このガラス基板上でITO透明電極の間に非感光性ポリイミドの隔壁203（幅20μm、厚さ2.0μm）をフォトリソグラフィーで形成させた。

[0452] ITO電極上ポリイミド隔壁の間に下記組成の正孔注入層組成物を、インクジェットヘッド（エプソン社製；MJ800C）を用いて吐出注入し、紫外光を150秒間照射し、60℃、10分間の乾燥処理により膜厚40nmの正孔注入層204を作製した。

[0453] この正孔注入層上に、各々下記の青色発光層組成物、緑色発光層組成物、赤色発光層組成物を同様にインクジェットヘッドを使用して吐出注入し、60℃、10分間乾燥処理し、それぞれの発光層（205B、205G、205R）を形成させた。次に、発光層を覆うように上に化合物例25を20nm

m蒸着し、更にフッ化ナトリウムを0.6nm、陰極としてAl(206)を130nm真空蒸着して有機EL素子を作製した。

[0454] 作製した有機EL素子はそれぞれの電極に電圧を印加することにより各々青色、緑色、赤色の発光を示し、フルカラー表示装置として利用できることがわかった。

[0455] (正孔注入層組成物)

正孔輸送材料5 20質量部

シクロヘキシルベンゼン 50質量部

イソプロピルビフェニル 50質量部

(青色発光層組成物)

Host-9 0.7質量部

D-26 0.04質量部

シクロヘキシルベンゼン 50質量部

イソプロピルビフェニル 50質量部

(緑色発光層組成物)

Host-9 0.7質量部

D-1 0.04質量部

シクロヘキシルベンゼン 50質量部

イソプロピルビフェニル 50質量部

(赤色発光層組成物)

Host-9 0.7質量部

D-10 0.04質量部

シクロヘキシルベンゼン 50質量部

イソプロピルビフェニル 50質量部

実施例9

《白色の有機EL素子9-1の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO(インジウムチンオキシド)を100nm成膜した基板(NHテクノグラス

社製NA45) にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

[0456] この透明支持基板の上に、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)-ポリスチレンスルホネート(PEDOT/PSS、Bayer社製、Baytron PA14083)を純水で70%に希釈した溶液を3000rpm、30秒でスピコート法により成膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚30nmの第一正孔輸送層を設けた。

[0457] この基板を窒素雰囲気下に移し、第一正孔輸送層上に、50mgの正孔輸送材料6を10mlのトルエンに溶解した溶液を1000rpm、30秒の条件下、スピコート法により成膜した。180秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行った後、60℃で1時間真空乾燥し第2正孔輸送層とした。

[0458] 次に、Host-25(60mg)、D-6(3.0mg)、D-24(3.0mg)をトルエン6mlに溶解した溶液を用い、1000rpm、30秒の条件下、スピコート法により成膜した。60℃で1時間真空乾燥し発光層とした。

[0459] 更に、化合物例3(30mg)をヘキサフルオロイソプロパノール(HFIP)5mlに溶解した溶液を用い、1500rpm、30秒の条件下、スピコート法により成膜した後、60℃で1時間真空乾燥し電子輸送層とした。

[0460] 続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、モリブデン製抵抗加熱ボートにAlq₃を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。真空槽を4×10⁻⁴Paまで減圧した後、Alq₃の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で前記電子輸送層の上に蒸着して、更に膜厚40nmの第2の電子輸送層を設けた。

[0461] 尚、蒸着時の基板温度は室温(23℃~25℃)であった。

[0462] 引き続き、フッ化カリウム0.5nm及びアルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子9-1を作製した。

[0463] この素子に通電したところほぼ白色の光が得られ、照明装置として使用できることが判った。尚、例示の他の化合物に置き換えても同様に白色の発光が得られることが判った。

符号の説明

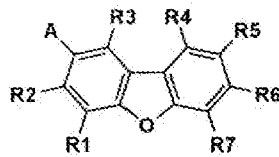
- [0464]
- 1 ディスプレイ
 - 3 画素
 - 5 走査線
 - 6 データ線
 - 7 電源ライン
 - 10 有機EL素子
 - 11 スwitchングトランジスタ
 - 12 駆動トランジスタ
 - 13 コンデンサ
 - A 表示部
 - B 制御部
 - 101 有機EL素子
 - 102 ガラスカバー
 - 105 陰極
 - 106 有機EL層
 - 107 透明電極付きガラス基板
 - 108 窒素ガス
 - 109 捕水剤
 - 201 ガラス基板
 - 202 ITO透明電極
 - 203 隔壁
 - 204 正孔注入層
 - 205B、205G、205R 発光層

請求の範囲

[請求項1] 陽極と陰極の間に発光層を含む複数の構成層が狭持されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、
 該構成層として、下記一般式（1）で表される化合物を少なくとも一種含有する電子輸送層を有し、該発光層の少なくとも1つがリン光発光性の有機金属錯体を含有し、かつ、該陰極または該陰極に接する構成層中に、周期表第1族または第2族に属する元素の金属または金属化合物を含有し、該元素の金属イオン（ M^{n+} ）／金属（M）系の標準電極電位が $-3V$ vs. SHEよりも大きいことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化1]

一般式(1)

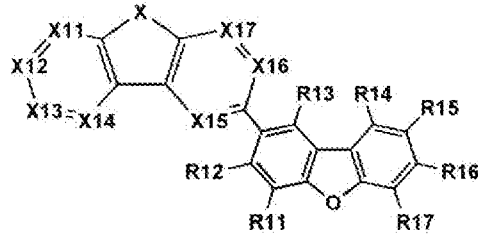


[式中、R1～R7は、各々水素原子または置換基を表す。Aは、フェニル基または芳香族複素環基を表す。但し、Aは部分構造として、少なくとも1つのカルバゾール環、アザカルバゾール環、ジベンゾフラン環またはジベンゾチオフェン環を含む。]

[請求項2] 前記一般式（1）で表される化合物が下記一般式（2）で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化2]

一般式(2)



[式中、R11～R17は、各々水素原子または置換基を表し、Xは、 $-O-$ 、 $-S-$ 、または $-N(R10)-$ を表し、R10は水素原子または置換基を表す。X11～X17は $-C(R18)=$ または $-N=$ を表し、R18は水素原子または置換基を表す。 $-C(R18)=$ が複数存在する場合にはR18は同じでも異なってもよい。但し、R10～R18の少なくとも1つは置換基を表す。]

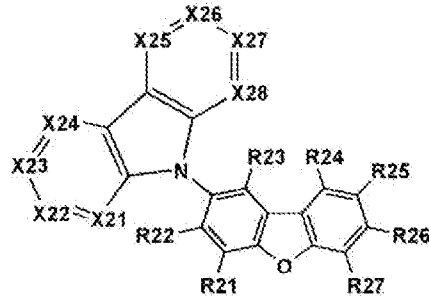
[請求項3] 前記一般式(2)のXが、 $-N(R10)-$ を表し、R11～R14、R16、R17が各々水素原子を表し、且つ、X11、X12、X14～X17が、各々 $-CH=$ または $-N=$ を表すことを特徴とする請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項4] 前記一般式(2)のXが、 $-O-$ または $-S-$ を表し、R11～R14、R16、R17が、各々水素原子であり、且つ、X11、X12、X14～X17が、各々 $-CH=$ を表すことを特徴とする請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項5] 前記一般式(1)で表される化合物が下記一般式(3)で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化3]

一般式(3)



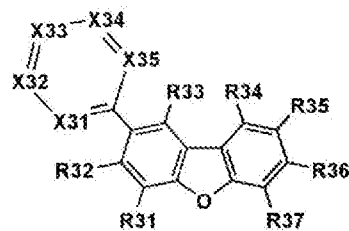
[式中、R 2 1～R 2 7は、各々水素原子または置換基を表す。X 2 1～X 2 8は、各々-C (R 2 8) =または-N=を表し、R 2 8は水素原子または置換基を表す。-C (R 2 8) =が複数存在する場合にはR 2 8は同じでも異なってもよい。但し、R 2 1～R 2 8の少なくとも1つは置換基を表す。]

[請求項6] 前記一般式(3)のR 2 1～R 2 4、R 2 6、R 2 7が、各々水素原子を表し、X 2 1、X 2 2、X 2 4、X 2 5、X 2 7、X 2 8が、各々-CH=または-N=を表すことを特徴とする請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項7] 前記一般式(1)で表される化合物が下記一般式(4)で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化4]

一般式(4)



[式中、R 3 1～R 3 7は、各々水素原子または置換基を表す。X 3

1～X35は、各々-C(R38)=または-N=を表し、R38は水素原子または置換基を表す。但し、X31～X35の少なくとも1つは、R38が置換基を表す-C(R38)=である。-C(R38)=が複数存在する場合にはR38は同じでも異なってもよい。]

[請求項8] 前記一般式(4)のR31～R34、R36、R37が、各々水素原子を表し、X33が、-CH=または-N=を表すことを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

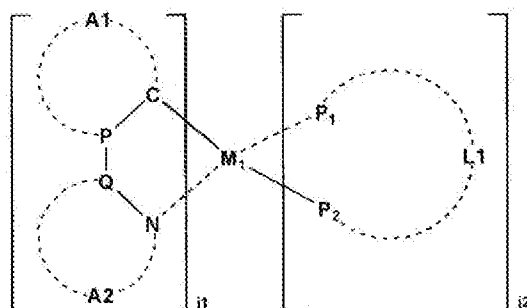
[請求項9] 前記一般式(1)～(4)のいずれかで表される化合物が、ピリジン環または該ピリジン環を含む縮合芳香族複素環を部分構造として少なくとも1つ有することを特徴とする請求項1～8のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項10] 前記元素が、ナトリウム、カリウムまたはセシウムを表すことを特徴とする請求項1～9のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項11] 前記リン光発光性の有機金属錯体の少なくとも1つが、下記一般式(5)で表される化合物であることを特徴とする請求項1～10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化5]

一般式(5)



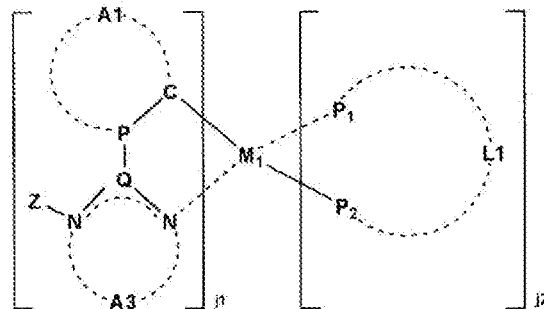
[式中、P、Qは、各々炭素原子または窒素原子を表し、A1はP-

Cと共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A₂はQ-Nと共に芳香族複素環を形成する原子群を表す。P₁-L₁-P₂は2座の配位子を表し、P₁、P₂は各々独立に炭素原子、窒素原子、または酸素原子を表す。L₁はP₁、P₂と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j₁は1~3の整数を表し、j₂は0~2の整数を表すが、j₁+j₂は2または3である。M₁は元素周期表における8族~10族の金属元素を表す。]

[請求項12] 前記一般式(5)で表される化合物が下記一般式(6)で表される化合物であることを特徴とする請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化6]

一般式(6)



[式中、Zは、炭化水素環基または複素環基を表す。P、Qは、各々炭素原子または窒素原子を表し、A₁はP-Cと共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A₃は-C(R₀₁)=C(R₀₂)-、-N=C(R₀₂)-、-C(R₀₁)=N-または-N=N-を表し、R₀₁、R₀₂は、各々水素原子または置換基を表す。P₁-L₁-P₂は2座の配位子を表し、P₁、P₂は各々独立に炭素原子、窒素原子、または酸素原子を表す。L₁はP₁、P₂と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j₁は1~3の整数を表し、j₂は0~2の整数を表すが、j₁+j₂は2または3である。

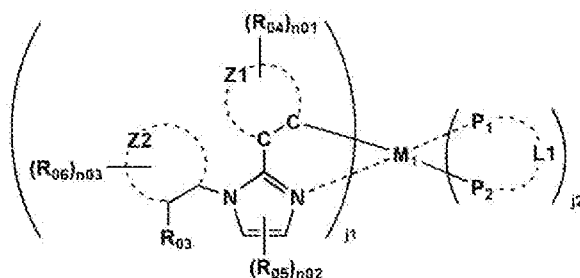
M_1 は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。]

[請求項13]

前記一般式(6)で表される化合物が下記一般式(7)で表される化合物であることを特徴とする請求項12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化7]

一般式(7)



[式中、 R_{03} は置換基を表し、 R_{04} は水素原子または置換基を表し、複数の R_{04} は互いに結合して環を形成してもよい。 n_{01} は1～4の整数を表す。 R_{05} は水素原子または置換基を表し、複数の R_{05} は互いに結合して環を形成してもよい。 n_{02} は1～2の整数を表す。 R_{06} は水素原子または置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。 n_{03} は1～4の整数を表す。 Z_1 はC-Cと共に6員の芳香族炭化水素環もしくは、5員または6員の芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 Z_2 は炭化水素環または複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 $P_1-L_1-P_2$ は2座の配位子を表し、 P_1 、 P_2 は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。 L_1 は P_1 、 P_2 と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。 j_1 は1～3の整数を表し、 j_2 は0～2の整数を表すが、 $j_1 + j_2$ は2または3である。 M_1 は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。 R_{03} と R_{06} 、 R_{04} と R_{06} 及び R_{05} と R_{06} は互いに結合して環を形成していてもよい。]

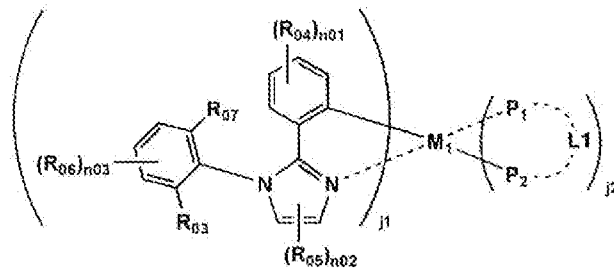
[請求項14]

前記一般式(7)で表される化合物が下記一般式(8)で表される化

化合物であることを特徴とする請求項 13 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化8]

一般式(8)



[式中、 R_{03} は置換基を表し、 R_{04} は水素原子または置換基を表し、複数の R_{04} は互いに結合して環を形成してもよい。 n_{01} は1～4の整数を表す。 R_{05} は水素原子または置換基を表し、複数の R_{05} は互いに結合して環を形成してもよい。 n_{02} は1～2の整数を表す。 R_{06} は水素原子または置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。 n_{03} は1～3の整数を表す。 R_{07} は置換基または単結合手を表す。 $P_1-L_1-P_2$ は2座の配位子を表し、 P_1 、 P_2 は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。 L_1 は P_1 、 P_2 と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。 j_1 は1～3の整数を表し、 j_2 は0～2の整数を表すが、 $j_1 + j_2$ は2または3である。 M_1 は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。]

[請求項15] 前記 M_1 がイリジウムを表すことを特徴とする請求項 11～14 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項16] 前記電子輸送層と発光層とを含む少なくとも2層の有機層が湿式法で形成されたことを特徴とする請求項 1～15 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

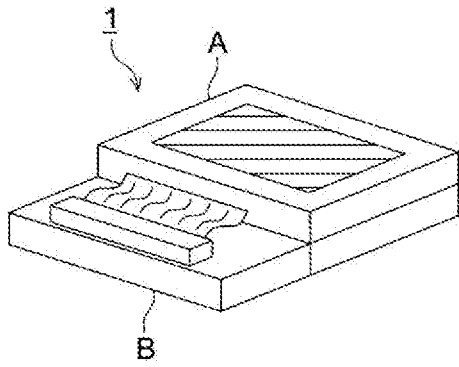
[請求項17] 白色に発光することを特徴とする請求項 1～16 のいずれか 1 項に記

載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

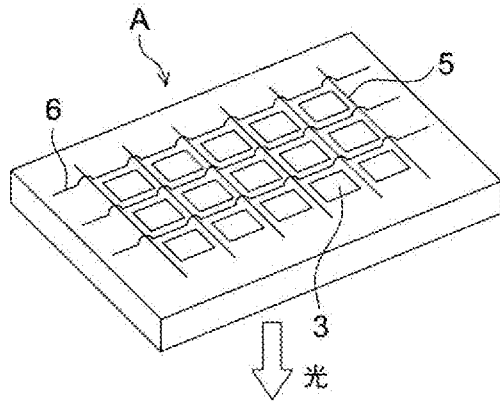
[請求項18] 請求項1～16のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

[請求項19] 請求項1～16のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

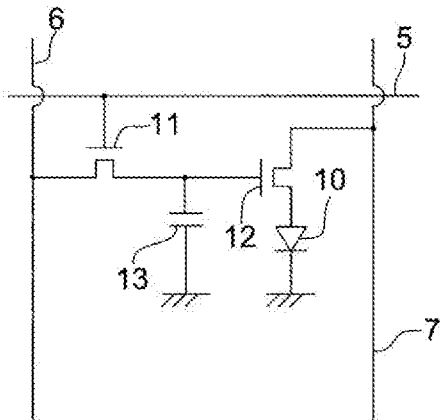
[図1]



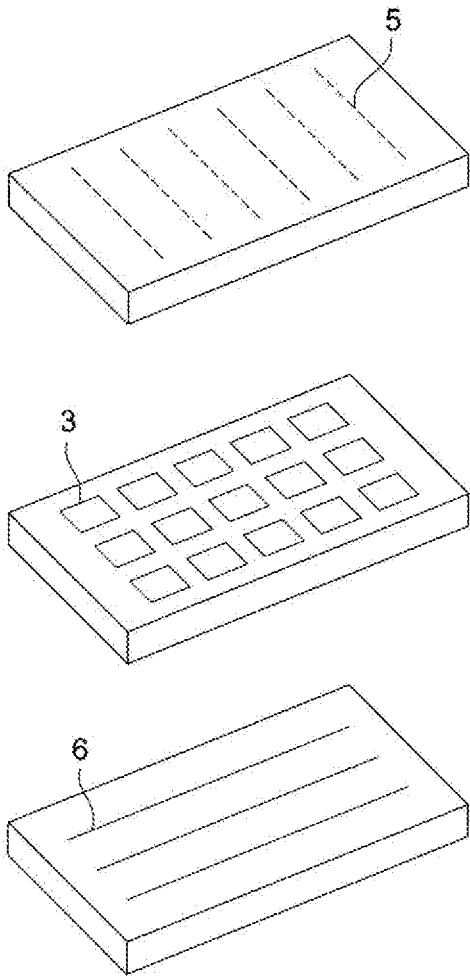
[図2]



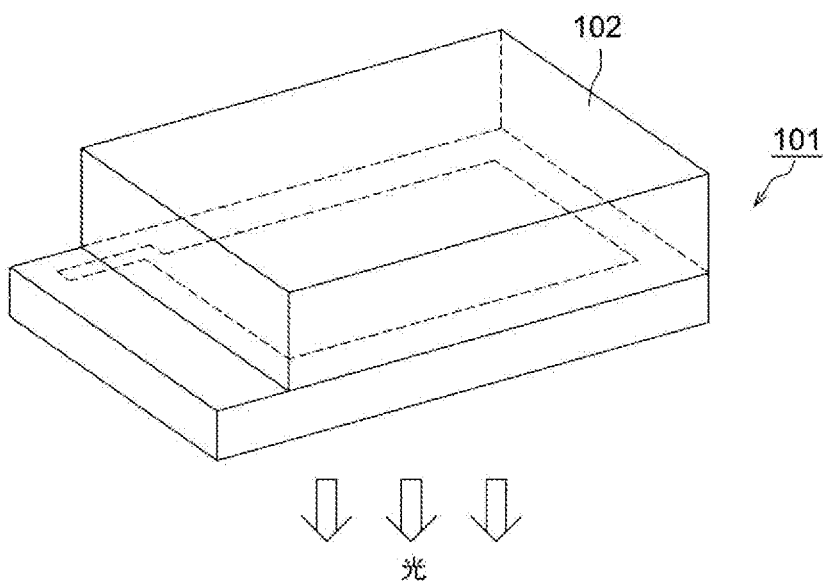
[図3]



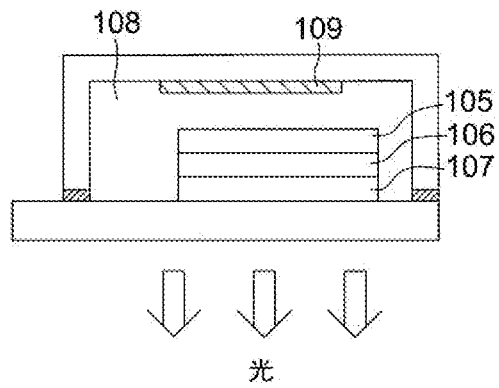
[図4]



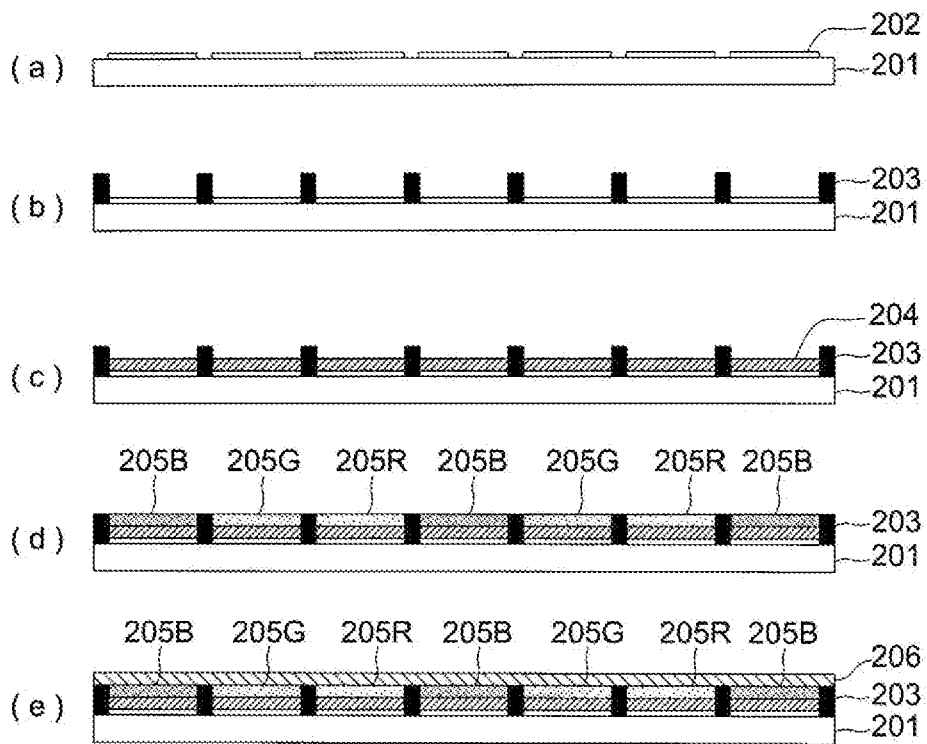
[図5]



[図6]



[図7]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/050692

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L51/50(2006.01)i, C07D405/14(2006.01)i, C07D409/14(2006.01)i,
C07D413/14(2006.01)i, C07D471/04(2006.01)i, C07D519/00(2006.01)i,
C09K11/06(2006.01)i, H05B33/26(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L51/50, C07D405/14, C07D409/14, C07D413/14, C07D471/04, C07D519/00,
C09K11/06, H05B33/26

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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

CA/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, X	JP 2010-34548 A (Toray Industries, Inc.), 12 February 2010 (12.02.2010), claims; paragraph [0045], compound 25; paragraphs [0054], [0067]; paragraph [0081], compound (1E-8); paragraph [0083], table 1, example 10; paragraph [0088], chemical formula 15(D-4) (Family: none)	1-19
P, X	JP 2009-267255 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 12 November 2009 (12.11.2009), claims 1 to 5, 14; paragraphs [0027] to [0035], [0037], [0045] (Family: none)	1-19

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
16 April, 2010 (16.04.10)

Date of mailing of the international search report
27 April, 2010 (27.04.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/050692

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	JP 2009-263579 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 12 November 2009 (12.11.2009), claims 1 to 5, 11, 14; paragraphs [0029], [0036] to [0037] (Family: none)	1-19
X Y	JP 2009-21336 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 29 January 2009 (29.01.2009), claims; paragraphs [0090] to [0121]; paragraph [0136], HB-36; paragraph [0137], HB-46; paragraph [0138], HB-54; paragraph [0140], HB-62; paragraphs [0188] to [0189]; paragraph [0253], table 2, organic EL element 1-5; paragraph [0288], table 6, organic EL element 3-8 (Family: none)	1-9,11-19 10
X Y	WO 2008/146838 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 04 December 2008 (04.12.2008), paragraphs [0019], [0027] to [0028]; paragraph [0093], a-39; paragraphs [0134], [0253]; paragraph [0256], table 3, organic EL element 4-2 (Family: none)	1-9,11-19 10
X Y	JP 2008-74939 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 03 April 2008 (03.04.2008), claims; paragraphs [0138]; paragraph [0217], table 10, organic EL element 2-7 (Family: none)	1-9,11-19 10
X Y	WO 2007/132886 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 22 November 2007 (22.11.2007), paragraphs [0026], [0051], [0101]; paragraph [0020], example 4 to paragraph [0225], table 4, organic EL elements 4-2, 4-5 & JP 2007-311460 A & US 2009/0167165 A	1-9,11-19 10
Y	WO 2008/132965 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 06 November 2008 (06.11.2008), paragraphs [0066] to [0068], [0275]; paragraph [0288], table 1, organic EL element no.1 to 3, 5, 6 (Family: none)	10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/050692

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2008-270190 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 06 November 2008 (06.11.2008), paragraph [0259] & US 2008/0238305 A1	10
A	JP 2009-158848 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 16 July 2009 (16.07.2009), entire text; all drawings (Family: none)	1-19
A	JP 2009-155300 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 16 July 2009 (16.07.2009), entire text; all drawings (Family: none)	1-19
A	JP 2008-60379 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 13 March 2008 (13.03.2008), entire text; all drawings (Family: none)	1-19

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C07D405/14(2006.01)i, C07D409/14(2006.01)i, C07D413/14(2006.01)i, C07D471/04(2006.01)i, C07D519/00(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H05B33/26(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L51/50, C07D405/14, C07D409/14, C07D413/14, C07D471/04, C07D519/00, C09K11/06, H05B33/26

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2010年
日本国実用新案登録公報	1996-2010年
日本国登録実用新案公報	1994-2010年

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

CA/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
EX	JP 2010-34548 A(東レ株式会社)2010.02.12, 【特許請求の範囲】, 【0045】化合物[25], 【0054】, 【0067】, 【0081】化合物(1E-8), 【0083】【表1】実施例10, 【0088】【化15】(D-4)(ファミリーなし)	1-19
PX	JP 2009-267255 A(出光興産株式会社)2009.11.12, 【請求項1】～【請求項5】, 【請求項14】, 【0027】～【0035】, 【0037】, 【0045】(ファミリーなし)	1-19
PX	JP 2009-263579 A(出光興産株式会社)2009.11.12, 【請求項1】～【請求項5】, 【請求項11】, 【請求項14】, 【0029】, 【請求項15】	1-19

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 16.04.2010	国際調査報告の発送日 27.04.2010
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) 磯貝 香苗 電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
	【0036】～【0037】(ファミリーなし)	
X	JP 2009-21336 A(コニカミノルタホールディングス株式会社)2009.01.29,	1-9・11-19
Y	【特許請求の範囲】 , 【0090】～【0121】 , 【0136】 HB-36, 【0137】 HB-46, 【0138】 HB-54, 【0140】 HB-62, 【0188】～【0189】 , 【0253】 【表 2】 有機 EL 素子 1-5, 【0288】 【表 6】 有機 EL 素子 3-8 (ファミリーなし)	10
X	WO 2008/146838 A1(コニカミノルタホールディングス株式会社)	1-9・11-19
Y	2008.12.04, 【0019】 , 【0027】～【0028】 , 【0093】 a-39, 【0134】 , 【0253】 , 【0256】 【表 3】 有機 EL 素子 4-2(ファミリーなし)	10
X	JP 2008-74939 A(コニカミノルタホールディングス株式会社)2008.04.03,	1-9・11-19
Y	【特許請求の範囲】 , 【0138】 , 【0217】 【表 10】 有機 EL 素子 2-7 (ファミリーなし)	10
X	WO 2007/132886 A1(コニカミノルタホールディングス株式会社)2007.11.22	1-9・11-19
Y	【0026】 , 【0051】 , 【0101】 , 【0020】 実施例 4～ 【0225】 【表 4】 有機 EL 素子 4-2 及び 4-5 & JP 2007-311460 A & US 2009/0167165 A	10
Y	WO 2008/132965 A1(コニカミノルタホールディングス株式会社)2008.11.06	10
	【0066】～【0068】 , 【0275】 , 【0288】 【表 1】 有機 EL 素子 NO. 1～3, 5, 6 (ファミリーなし)	
Y	JP 2008-270190 A(コニカミノルタホールディングス株式会社)2008.11.06	10
	【0259】 & US 2008/0238305 A1	
A	JP 2009-158848 A(出光興産株式会社)2009.07.16, 全文全図 (ファミリーなし)	1-19
A	JP 2009-155300 A(出光興産株式会社)2009.07.16, 全文全図 (ファミリーなし)	1-19
A	JP 2008-60379 A(三井化学株式会社)2008.03.13, 全文全図 (ファミリーなし)	1-19