

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2014年2月13日(13.02.2014)



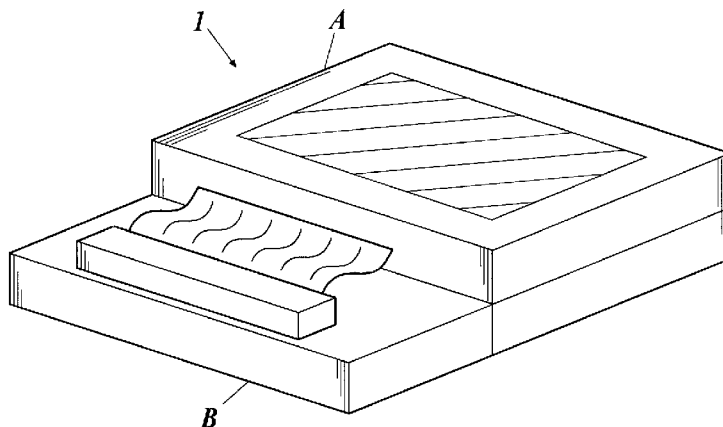
(10) 国際公開番号  
WO 2014/024668 A1

- (51) 国際特許分類:  
H01L 51/50 (2006.01) G09F 9/30 (2006.01)  
C09K 11/06 (2006.01) H01L 27/32 (2006.01)
  - (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/069842
  - (22) 国際出願日: 2013年7月23日(23.07.2013)
  - (25) 国際出願の言語: 日本語
  - (26) 国際公開の言語: 日本語
  - (30) 優先権データ:  
特願 2012-174915 2012年8月7日(07.08.2012) JP
  - (71) 出願人: コニカミノルタ株式会社(KONICA MINOLTA, INC.) [JP/JP]; 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 Tokyo (JP).
  - (72) 発明者: 大津 信也(OTSU, Shinya); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 加藤 栄作(KATO, Eisaku); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 轟目 麻由香(HIKIME, Mayuka); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP).
  - (74) 代理人: 特許業務法人光陽国際特許事務所 (KOYO INTERNATIONAL PATENT FIRM); 〒1000006 東京都千代田区有楽町一丁目1番3号 東京宝塚ビル17階 Tokyo (JP).
  - (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
  - (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, LIGHTING DEVICE AND DISPLAY DEVICE

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

FIG.1



(57) Abstract: This organic EL element is configured so that at least one organic layer including a light emitting layer is held between a positive electrode and a negative electrode, and the light emitting layer contains an iridium complex compound represented by one of general formulae (1)-(4). The iridium complex compound has an emission peak wavelength of 470 nm or less.

(57) 要約: 有機EL素子は、陽極と陰極との間に、発光層を含む少なくとも1層の有機層が挟持されて構成され、発光層に一般式(1)~(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物が含有され、当該イリジウム錯体化合物の発光極大波長は470nm以下である。

WO 2014/024668 A1

## 明 細 書

発明の名称：

有機エレクトロルミネッセンス素子、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、照明装置及び表示装置に関する。

### 背景技術

[0002] 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）は、発光する化合物を含有する発光層を、陰極と陽極とで挟んだ構成を有し、電界を印加することにより、陽極から注入された正孔と陰極から注入された電子を発光層内で再結合させることで励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・リン光）を利用した発光素子である。また、有機EL素子は、電極と電極の間を厚さわずかサブミクロン程度の有機材料の膜で構成する全固体素子であり、数V～数十V程度の電圧で発光が可能であることから、次世代の平面ディスプレイや照明への利用が期待されている。

[0003] 実用化に向けた有機EL素子の開発としては、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（例えば、非特許文献1参照）、以来、室温でリン光を示す材料の研究が活発になってきている（例えば、特許文献1、非特許文献2参照）。

[0004] 更に、リン光発光を利用する有機EL素子は、以前の蛍光発光を利用する有機EL素子に比べ原理的に約4倍の発光効率が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。例えば、イリジウム錯体系等重金属錯体を中心に多くの化合物が合成検討なされている（例えば、非特許文献3参照）。

[0005] このように、リン光発光方式は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課題となっている。

[0006] 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と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2参照）。また、発光層にはホスト化合物とドーパントとしてのリン光発光性化合物とを用いた混合層が多く用いられている。

[0007] 一方、材料の観点からは高いキャリア輸送性や熱的、電氣的に安定な材料が求められている。特に青色リン光発光を利用するにあたっては、青色リン光発光性化合物自身が高い三重項励起エネルギー（T1）を有しているために、適用可能な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。

[0008] 代表的な青色リン光発光性化合物としてはF l r p i cが知られており、主配位子のフェニルピリジンにフッ素置換をすること、及び副配位子としてピコリン酸を用いることにより短波化が実現されている。これらのドーパントはカルバゾール誘導体やトリアリールシラン類をホスト化合物として組み合わせることによって素子の高効率化が達成されているが、素子の発光寿命が大幅に劣化するため、そのトレードオフの改善が求められていた。

このトレードオフを改善する手段として、金属錯体を籠化して熱安定性を上げる検討がなされている。例えば、有機EL素子材料である金属錯体の熱安定性を改良することで、蒸着の際に分解物が発生することを防止し、素子性能を向上させる技術等がある。

[0009] また、近年、高いポテンシャルを有する青色リン光発光性化合物として、特定の配位子を有する金属錯体が見出されている（例えば、特許文献3、4参照）。

**先行技術文献**

## 特許文献

- [0010] 特許文献1：米国特許第6, 097, 147号明細書  
特許文献2：特開2005-112765号公報  
特許文献3：米国特許出願公開第2011/0057559号明細書  
特許文献4：国際公開第2011/086089号

## 非特許文献

- [0011] 非特許文献1：M. A. Baldo et al., nature、395巻、151～154ページ（1998年）  
非特許文献2：M. A. Baldo et al., nature、403巻、17号、750～753頁（2000年）  
非特許文献3：S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304頁（2001年）

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

- [0012] しかしながら、上記した従来の金属錯体は青色純度が十分ではなく、更なる性能の向上が求められている。また、そのようなより短波な青色リン光発光材料においては、熱安定性だけでなく、そのバンドギャップの広さに起因した、励起子の安定性、キャリア通電時の安定性も求められている。
- [0013] したがって、本発明の目的は、有機エレクトロルミネッセンス素子材料の熱安定性、励起子の安定性、キャリア通電時の安定性を向上させ、且つ発光スペクトルの波形を改良することで、発光効率が高く長寿命な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。

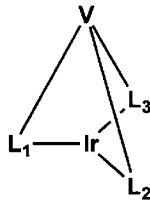
### 課題を解決するための手段

- [0014] 本発明の上記目的を達成するため、本発明の一態様によれば、  
陽極と陰極との間に、発光層を含む少なくとも1層の有機層が挟持された有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記発光層に、下記一般式（１）～（４）の何れかで表されるイリジウム錯体化合物が含有され、当該イリジウム錯体化合物の発光極大波長が４７０nm以下であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子が提供される。

[0015] [化1]

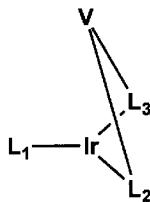
一般式(1)



[0016] 一般式（１）中、Vは三価の連結基を表し、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>と共有結合で連結している。L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式（５）で表される。

[0017] [化2]

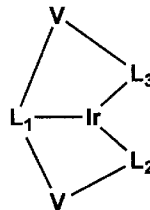
一般式(2)



[0018] 一般式（２）中、Vは二価の連結基を表し、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>と共有結合で連結している。L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式（５）で表される。

[0019] [化3]

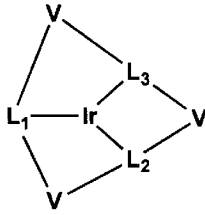
一般式(3)



[0020] 一般式（３）中、Vはそれぞれ二価の連結基を表し、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>とそれぞれ共有結合で連結している。L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式（５）で表される。

[0021] [化4]

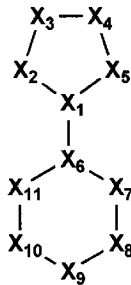
一般式(4)



[0022] 一般式(4)中、Vはそれぞれ二価の連結基を表し、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>とそれぞれ共有結合で連結している。L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式(5)で表される。

[0023] [化5]

一般式(5)



[0024] 一般式(5)中、X<sub>1</sub>～X<sub>5</sub>は含窒素複素環を形成する元素群であり、炭素原子又は窒素原子から選ばれ、X<sub>4</sub>及びX<sub>5</sub>のうち少なくとも1つは窒素原子を表し、X<sub>5</sub>は前記一般式(1)～(4)におけるIrと配位結合を形成する。X<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>は芳香族5員環又は芳香族6員環を形成する元素群であり、炭素原子又は窒素原子から選ばれ、X<sub>7</sub>は前記一般式(1)～(4)におけるIrと共有結合を形成する。但し、X<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>が芳香族5員環を形成する場合にはX<sub>11</sub>は単なる結合手を表す。

[0025] また、本発明の更に他の態様によれば、

上記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が提供される。

[0026] また、本発明の更に他の態様によれば、

上記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

置が提供される。

## 発明の効果

[0027] 本発明によれば、熱安定性に優れるだけでなく、錯体の励起状態の安定性、キャリア通電時の安定性に優れ、良好な発光スペクトル波形を有する有機エレクトロルミネッセンス素子材料を用い、発光効率が高く長寿命な有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を用いた照明装置及び表示装置を提供することができる。

## 図面の簡単な説明

[0028] [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7A]有機ELフルカラー表示装置の概略構成図を示す。

[図7B]有機ELフルカラー表示装置の概略構成図を示す。

[図7C]有機ELフルカラー表示装置の概略構成図を示す。

[図7D]有機ELフルカラー表示装置の概略構成図を示す。

[図7E]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

[0029] 以下、本発明を実施するための形態について詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0030] 《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。本発明の有機EL素子において、陽極と陰極との間に挟持される各種有機層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。

[0031] (i) 陽極／発光層ユニット／電子輸送層／陰極

(ii) 陽極／正孔輸送層／発光層ユニット／電子輸送層／陰極

(iii) 陽極／正孔輸送層／発光層ユニット／正孔阻止層／電子輸送層／陰極

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

[0032] 更に、発光層ユニットは複数の発光層の間に非発光性の中間層を有していてもよく、該中間層が電荷発生層であるようなマルチフォトンユニット構成であってもよい。この場合、電荷発生層としては、ITO（インジウム・錫酸化物）、IZO（インジウム・亜鉛酸化物）、 $ZnO_2$ 、TiN、ZrN、HfN、 $TiO_x$ 、 $VO_x$ 、CuI、InN、GaN、 $CuAlO_2$ 、 $CuGaO_2$ 、 $SrCu_2O_2$ 、 $LaB_6$ 、 $RuO_2$ 等の導電性無機化合物層や、Au/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>等の2層膜や、 $SnO_2/Ag/SnO_2$ 、 $ZnO/Ag/ZnO$ 、 $Bi_2O_3/Au/Bi_2O_3$ 、 $TiO_2/TiN/TiO_2$ 、 $TiO_2/ZrN/TiO_2$ 等の多層膜、またC60等のフラーレン類、オリゴチオフェン等の導電性有機物層、金属フタロシアニン類、無金属フタロシアニン類、金属ポルフィリン類、無金属ポルフィリン類等の導電性有機化合物層等が挙げられる。

[0033] 本発明の有機EL素子における発光層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。

[0034] 本発明の有機EL素子を構成する各層について以下説明する。

[0035] 《発光層》

本発明に係る発光層は、電極または電子輸送層及び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。

[0036] 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ことを防止し、且つ、駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、好ましくは2nm～5μmの範囲に調整され、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の範囲に調整される。

[0037] 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用いて、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。）等により成膜して形成することができる。

[0038] 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。

[0039] (1) 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、ドーパント化合物、単にドーパントともいう）について説明する。

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。

[0040] (1. 1) 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。

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。

[0041] 上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁（1992年版、丸善）に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に係るリン光ドーパントは、任意の溶媒のいずれかにおいて上記リン光量子収率（0.01以上）が達成されればよい。

- [0042] 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である。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。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。
- [0043] ここで、本発明者らは、上記本発明の目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、有機EL素子の有機層に、下記一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体ドーパントを含有させることで、有機EL素子の励起子安定性及びキャリア安定性を向上させられることを明らかにした。即ち、イリジウム原子に配位する複数の配位子を互いに連結させること、即ち籠化することで、励起状態、ラジカルアニオン又はラジカルカチオン状態でのイリジウム錯体のIr原子と配位子の離脱を防ぎ、励起子安定性及びキャリア安定性の向上に至った。また、本発明の一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物によって、発光スペクトルの波形を改良することができ、具体的には、長波側の発光を抑えることができた。更に、当該イリジウム錯体ドーパントが有機EL素子に含有されていることで、有機EL素子の高発光輝度と発光寿命の長寿命化とを達成できることを見出した。
- [0044] よって、本発明の有機EL素子は、発光層に、下記一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物が有機EL素子材料として含有されて構成されているものである。
- [0045] 本発明に係る下記一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物は、光源とサンプルの距離を10mmとし、UV-LED(5W/cm<sup>2</sup>)を20分照射したときの輝度残存率が、好ましくは60%以上であり、更に好ましくは70%以上であり、最も好ましくは80%以上である。

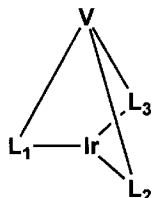
[0046] 本発明に係る下記一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物の2-メチルテトラヒドロフラン溶液中の発光スペクトルにおける「2波目強度/1波目強度」が、好ましくは0.95以下であり、更に好ましくは0.85以下であり、更に好ましくは0.75以下である。ここで、1波目強度は最も短波側の極大波長の強度を表し、2波目は2番目に短波側の極大波長の強度を表す。

[0047] (1. 1. 1) 一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物

本発明に係る一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物について説明する。本発明に係る有機EL素子の発光層に含有されるイリジウム錯体化合物は、下記一般式(1)～(4)で表される。

[0048] [化6]

一般式(1)

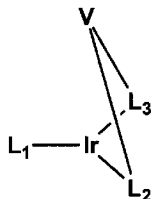


[0049] 一般式(1)において、Vは三価の連結基を表し、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>と共有結合で連結している。

一般式(1)において、L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式(5)で表される。

[0050] [化7]

一般式(2)

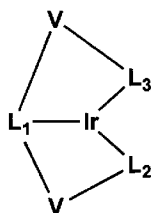


[0051] 一般式(2)において、Vは二価の連結基を表し、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>と共有結合で連結している。

一般式(2)において、L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式(5)で表される。

[0052] [化8]

一般式(3)

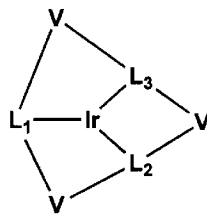


[0053] 一般式(3)において、Vはそれぞれ二価の連結基を表し、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>とそれぞれ共有結合で連結している。

一般式(3)において、L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式(5)で表される。

[0054] [化9]

一般式(4)



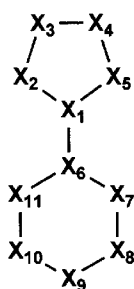
[0055] 一般式(4)において、Vはそれぞれ二価の連結基を表し、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>とそれぞれ共有結合で連結している。

一般式(4)において、L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式(5)で表される。

[0056] ここで、一般式(1)～(4)におけるL<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、下記一般式(5)で表される。

[0057] [化10]

一般式(5)



[0058] 一般式(5)において、X<sub>1</sub>～X<sub>5</sub>は含窒素複素環を形成する元素群であり、炭素原子又は窒素原子から選ばれ、X<sub>4</sub>及びX<sub>5</sub>のうち少なくとも1つは窒

素原子を表し、 $X_5$ は一般式(1)～(4)における $l_r$ と配位結合を形成する。

一般式(5)において、 $X_1 \sim X_5$ で表される含窒素複素環としては、例えば、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。

[0059] 一般式(5)において、 $X_6 \sim X_{11}$ は芳香族5員環又は芳香族6員環を形成する元素群であり、炭素原子又は窒素原子から選ばれ、 $X_7$ は一般式(1)～(4)における $l_r$ と共有結合を形成する。但し、 $X_6 \sim X_{11}$ が芳香族5員環を形成する場合には $X_{11}$ は単なる結合手を表す。

一般式(5)において、 $X_6 \sim X_{11}$ で表される芳香族5員環としては、例えば、チオフェン環、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、好ましくは、チオフェン環、イミダゾール環である。

一般式(5)において、 $X_6 \sim X_{11}$ で表される芳香族6員環としては、例えば、ベンゼン環、ピリジン環等が挙げられ、好ましくは、ベンゼン環である。

一般式(5)において、 $X_6 \sim X_{11}$ で表される芳香族5員環又は芳香族6員環は更に置換基を有していても良く、当該置換基が他の基と結合して縮合環を形成していても良い。置換基としては、例えば、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、トリフルオロメチル基、イソプロピル基等)、アルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、ジアルキルアミノ基(例えば、ジメチルアミノ基等)、トリアルキルシリル基(例えば、トリメチルシリル等)、トリアリールシリル基(例えば、トリフェニルシリル基等)、トリヘテロアリールシリル基(例えば、トリピリジルシリル基等)、ベンジル基、アリール基(例えば、フェニル基等)、ヘテロアリール基(例えば、ピリジル基、カルバゾリル基等)等が挙げられる。

[0060] また、本発明における一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物の発光極大波長は470nm以下を示す。

[0061] ここで、イリジウム錯体化合物の発光極大波長を測定する測定方法につい

て説明する。

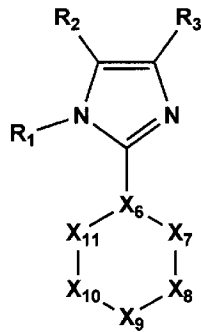
まず、測定するドーパント化合物を、よく脱酸素された 2-メチルテトラヒドロフラン溶媒に溶解させ、リン光測定用セルに入れた後、励起光を照射して発光スペクトルを測定する。なお、上記溶媒で溶解できない化合物については、その化合物を溶解しうる任意の溶媒を使用してもよい。

次に発光極大波長の求め方であるが、上記測定法で得られた発光スペクトルの中で、最も短波側に現れる極大波長をもって、発光極大波長とする。

[0062] また、上記した一般式 (5) は、好ましくは、下記一般式 (6) で表される。

[0063] [化11]

一般式(6)



[0064] 一般式 (6) において、 $X_6 \sim X_{11}$  は、一般式 (5) における  $X_6 \sim X_{11}$  と同義である。

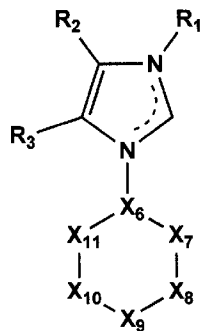
[0065] 一般式 (6) において、 $R_1$ 、 $R_2$  及び  $R_3$  は各々水素原子又は置換基を表し、 $R_1$  と  $X_{11}$  が環を形成していてもよい。

一般式 (6) において、 $R_1$ 、 $R_2$  及び  $R_3$  で表される置換基としては、一般式 (5) において  $X_6 \sim X_{11}$  で表される環が有していても良い置換基と同様のものが挙げられる。

[0066] また、上記した一般式 (5) は、好ましくは、下記一般式 (7) で表される。

[化12]

一般式(7)



[0067] 一般式(7)において、X<sub>6</sub>~X<sub>11</sub>は、一般式(5)におけるX<sub>6</sub>~X<sub>11</sub>と同義である。

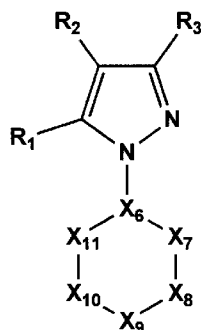
[0068] 一般式(7)において、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>3</sub>は各々水素原子又は置換基を表し、R<sub>3</sub>とX<sub>11</sub>が環を形成していてもよい。

一般式(7)において、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>3</sub>で表される置換基としては、一般式(5)においてX<sub>6</sub>~X<sub>11</sub>で表される環が有していても良い置換基と同様のものが挙げられる。

[0069] また、上記した一般式(5)は、好ましくは、下記一般式(8)で表される。

[0070] [化13]

一般式(8)



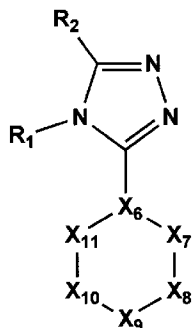
[0071] 一般式(8)において、X<sub>6</sub>~X<sub>11</sub>は、一般式(5)におけるX<sub>6</sub>~X<sub>11</sub>と同義である。

[0072] 一般式(8)において、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>3</sub>は、一般式(6)におけるR<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>3</sub>と同義である。

[0073] また、上記した一般式（５）は、好ましくは、下記一般式（９）で表される。

[0074] [化14]

一般式(9)



[0075] 一般式（９）において、X<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>は、一般式（５）におけるX<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>と同義である。

[0076] 一般式（９）において、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、一般式（６）におけるR<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>と同義である。

[0077] なお、一般式（１）～（４）においてVで表される二価又は三価の連結基は、L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>で表される各配位子と共有結合で連結することができれば何れの構造であっても良い。また、Vで表される連結基は、上記した一般式（５）～（９）における含窒素複素環に連結されていても良いし、X<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>で表される環に連結されていても良いし、これらの環が有する置換基に連結されていても良い。

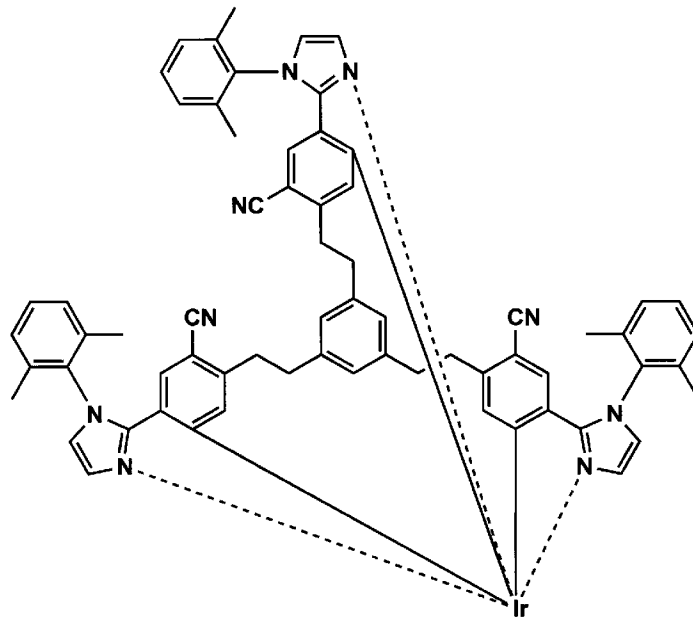
[0078] （１．１．２）具体例

以下、本発明に係る一般式（１）～（４）の何れかで表されるイリジウム錯体化合物の具体例を以下に示すが本発明はこれに限定されない。

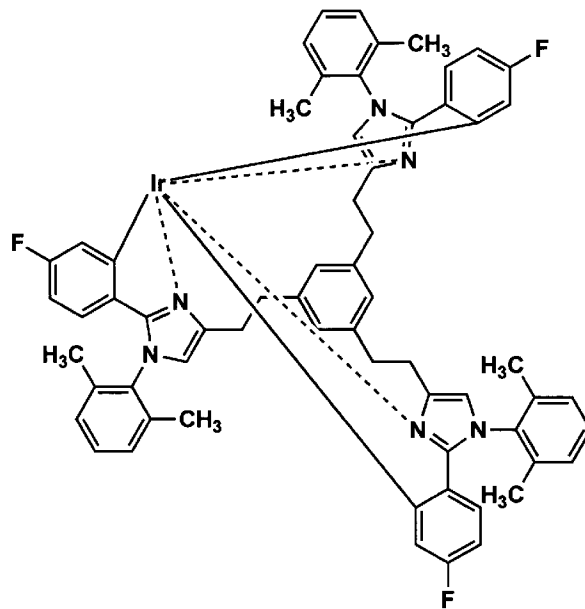
[0079]

[化15]

化合物例1



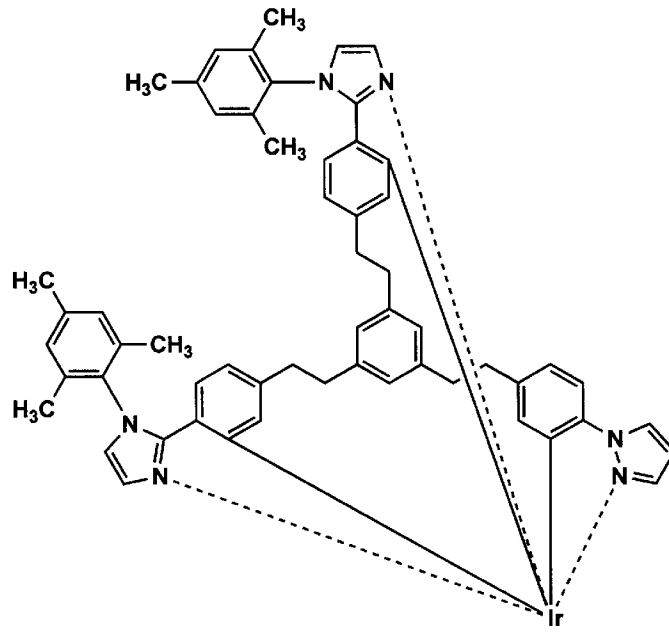
化合物例2



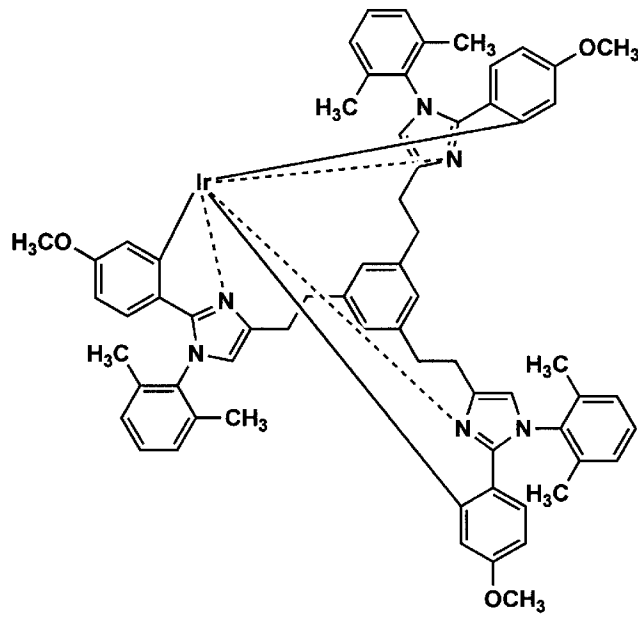
[0080]

[化16]

化合物例3



化合物例4

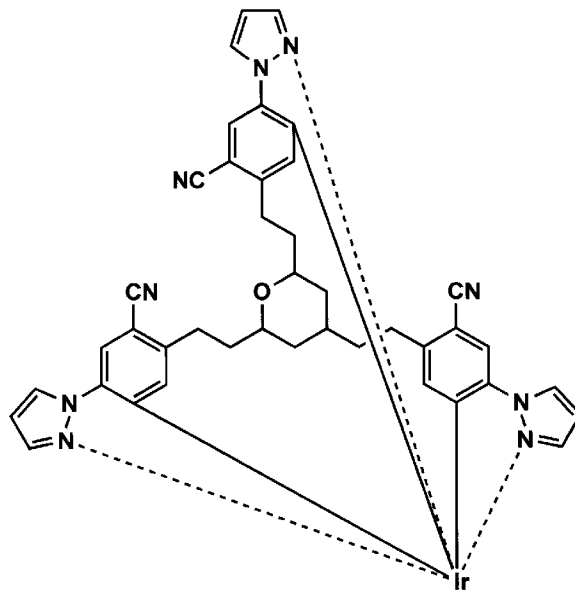


[0081]

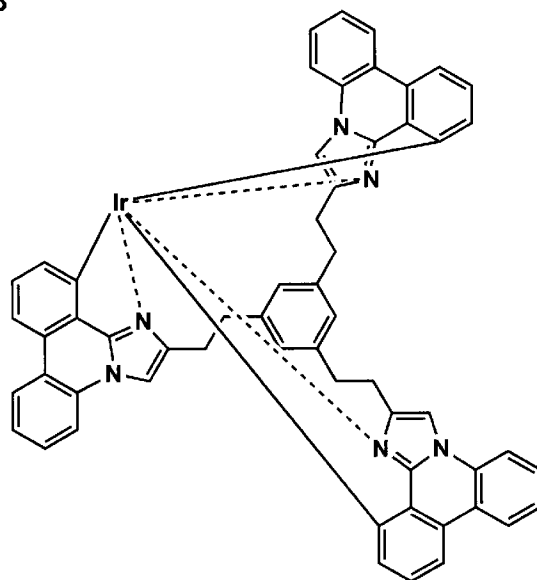


[化18]

化合物例7



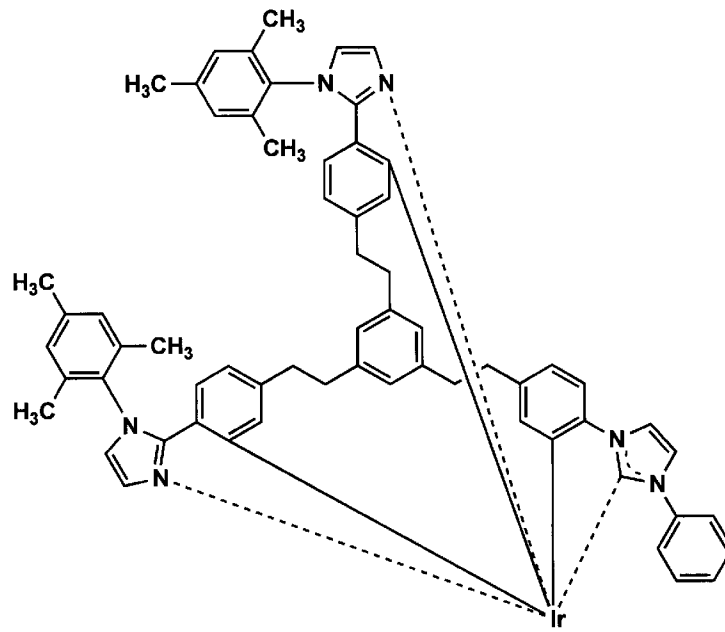
化合物例8



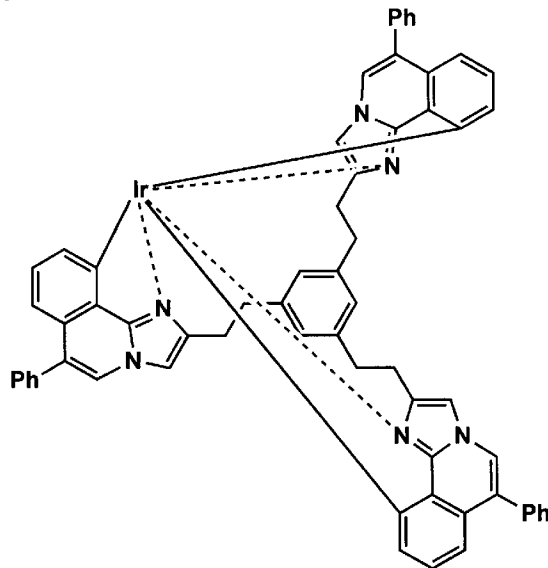
[0083]

[化19]

化合物例9



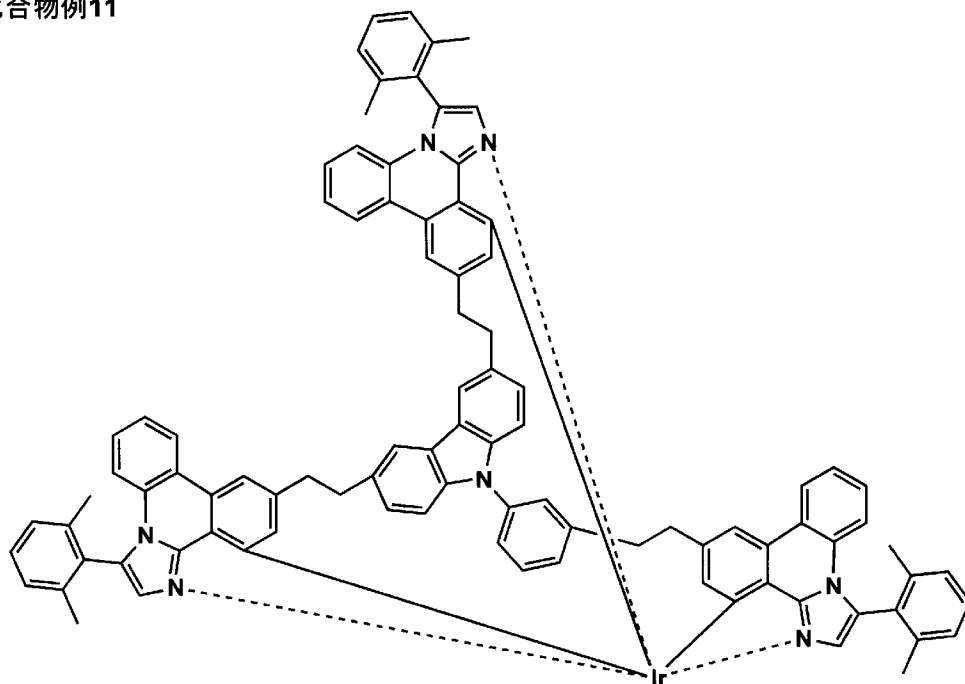
化合物例10



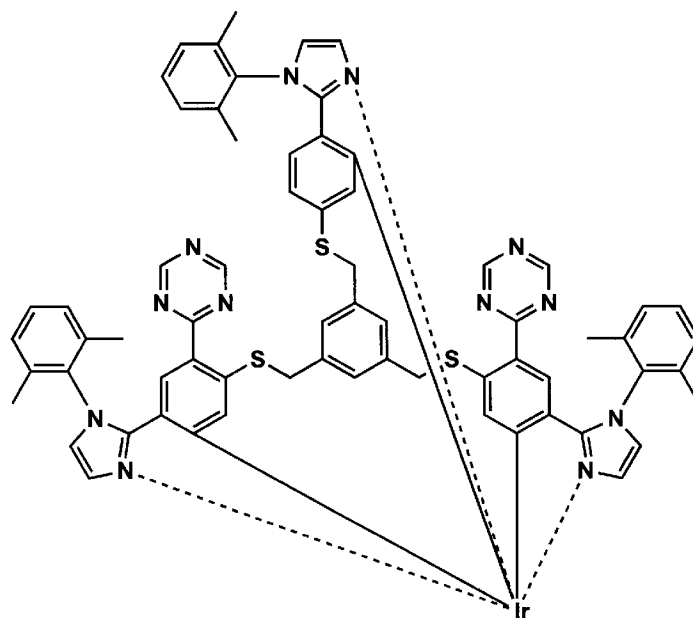
[0084]

[化20]

化合物例11



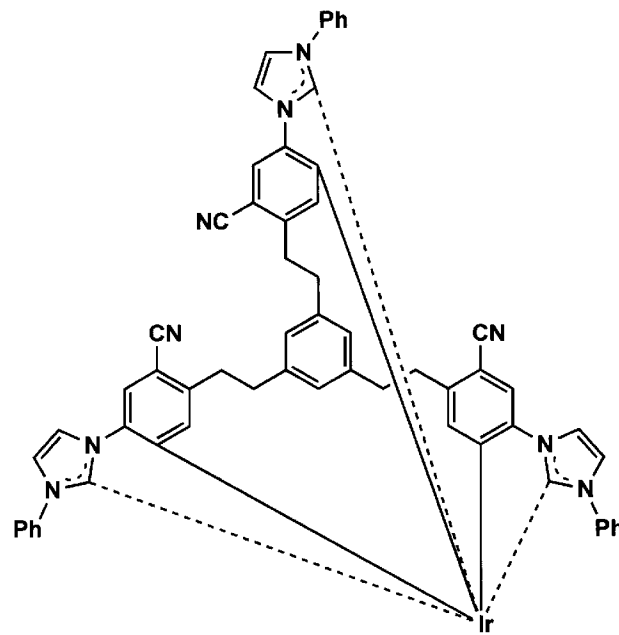
化合物例12



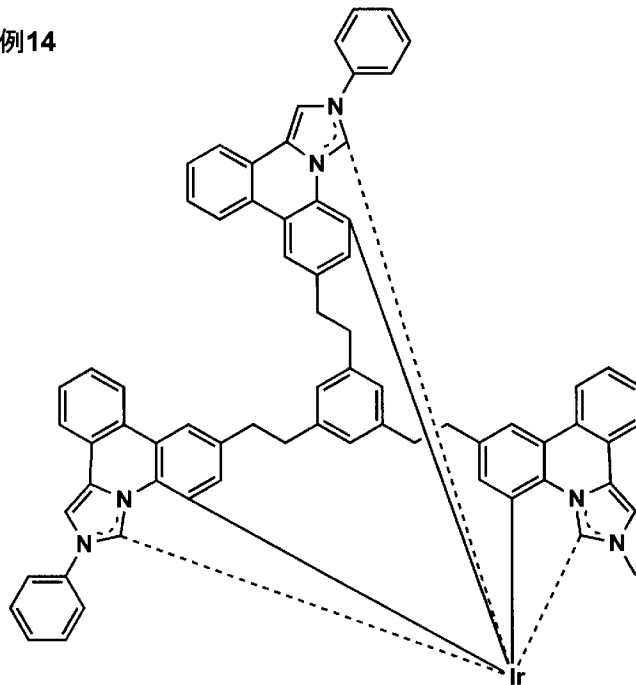
[0085]

[化21]

化合物例13



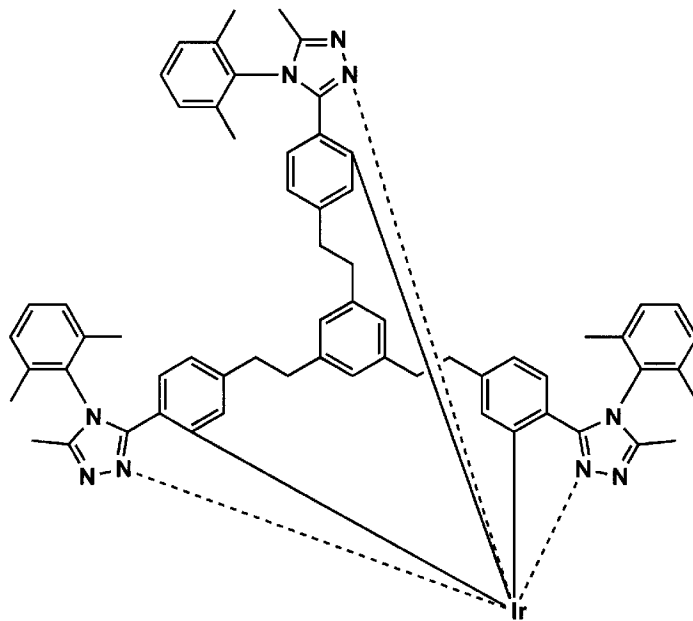
化合物例14



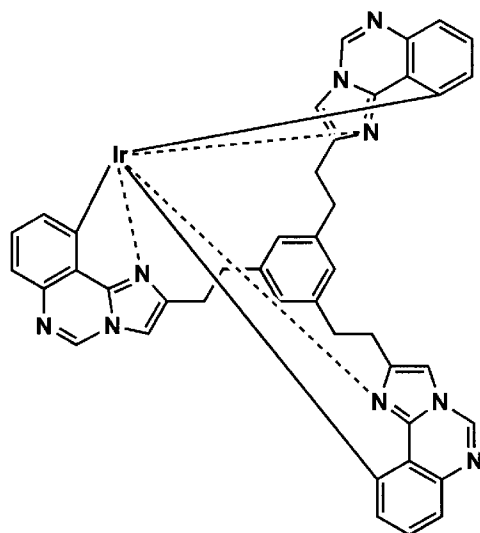
[0086]

[化22]

化合物例15



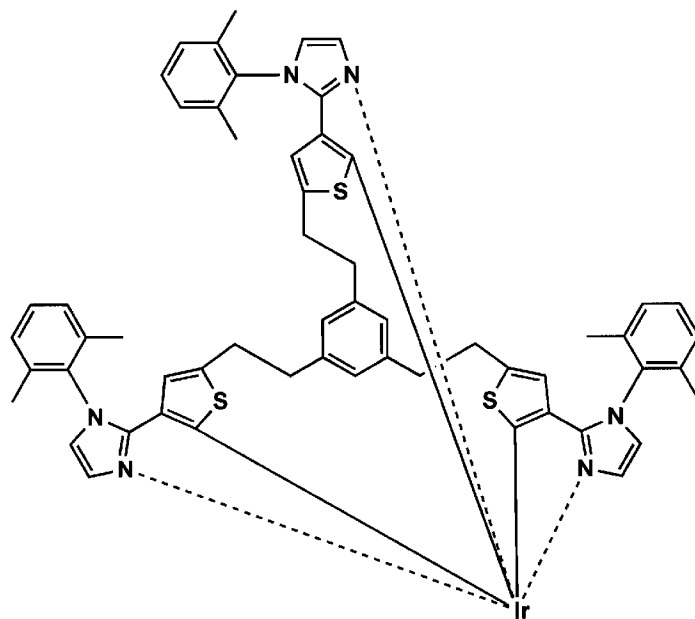
化合物例16



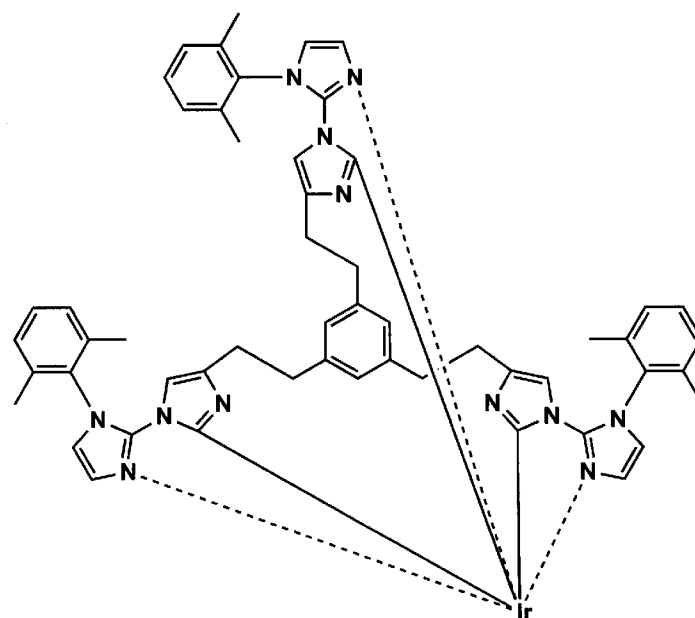
[0087]

[化23]

化合物例17



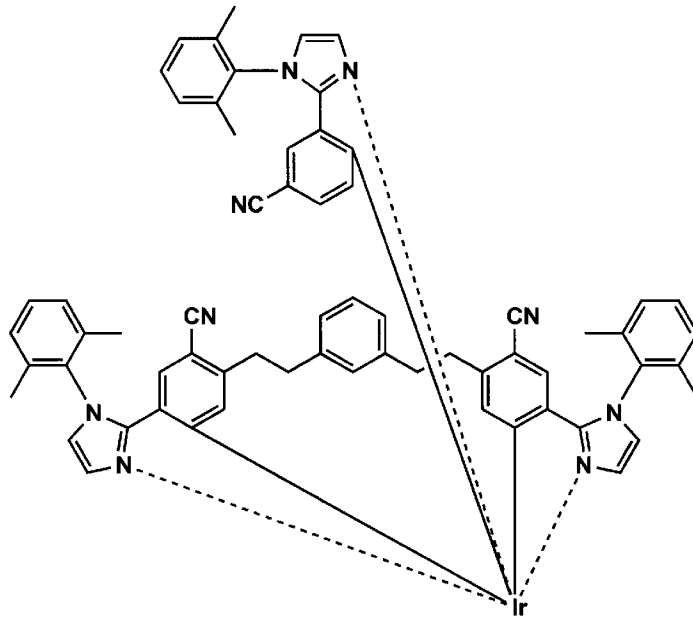
化合物例18



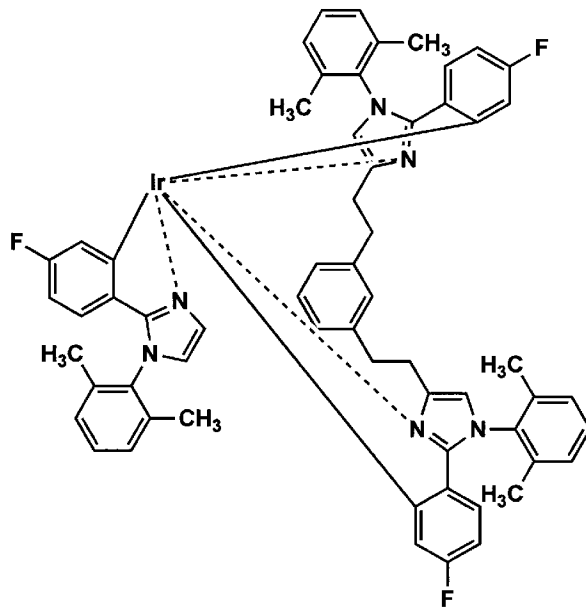
[0088]

[化24]

化合物例19



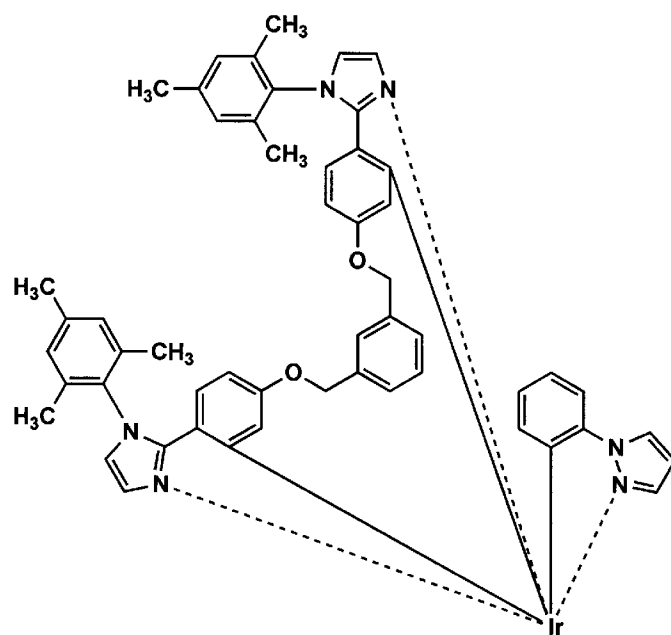
化合物例20



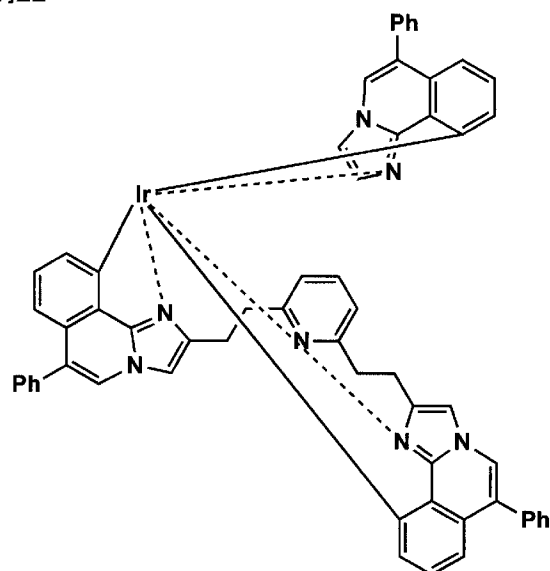
[0089]

[化25]

化合物例21



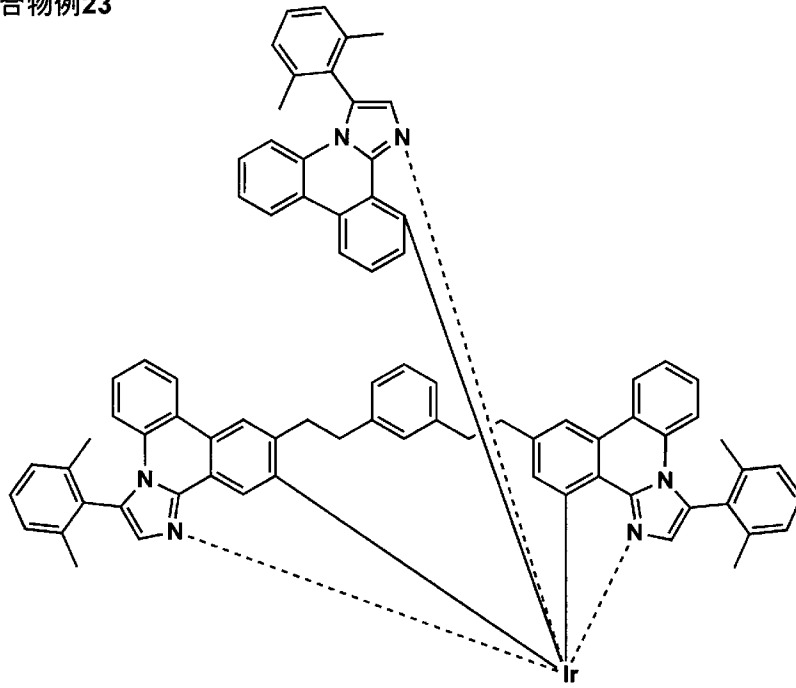
化合物例22



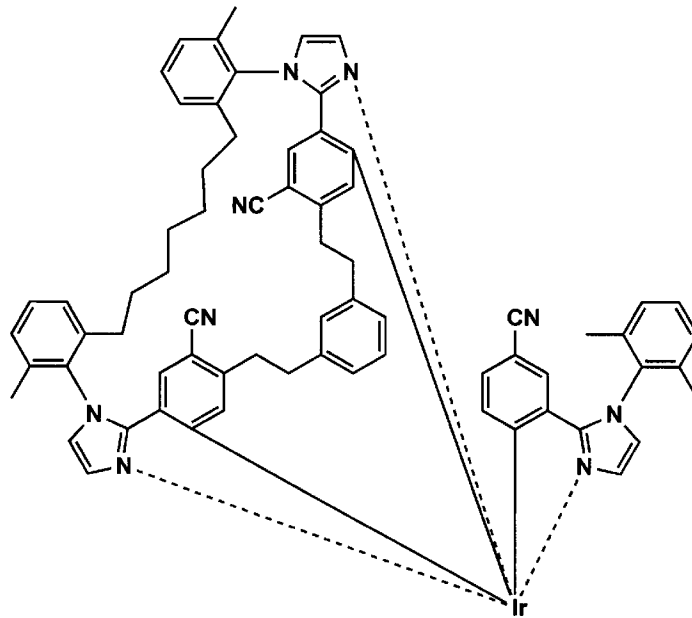
[0090]

[化26]

化合物例23



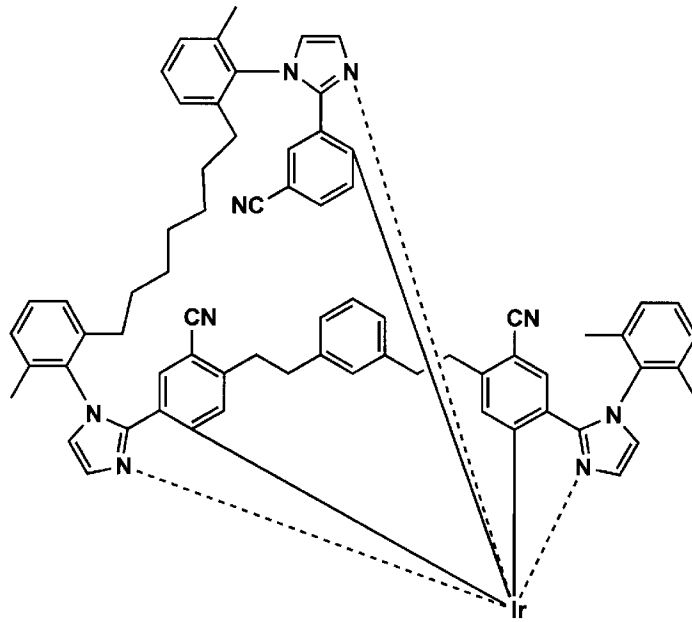
化合物例24



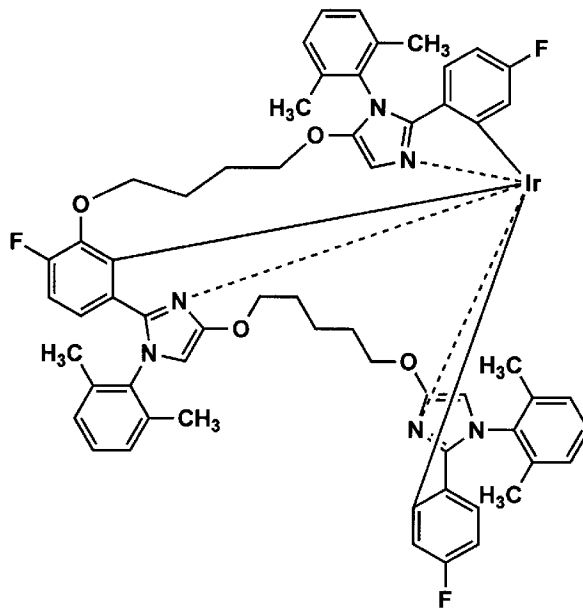
[0091]

[化27]

化合物例25



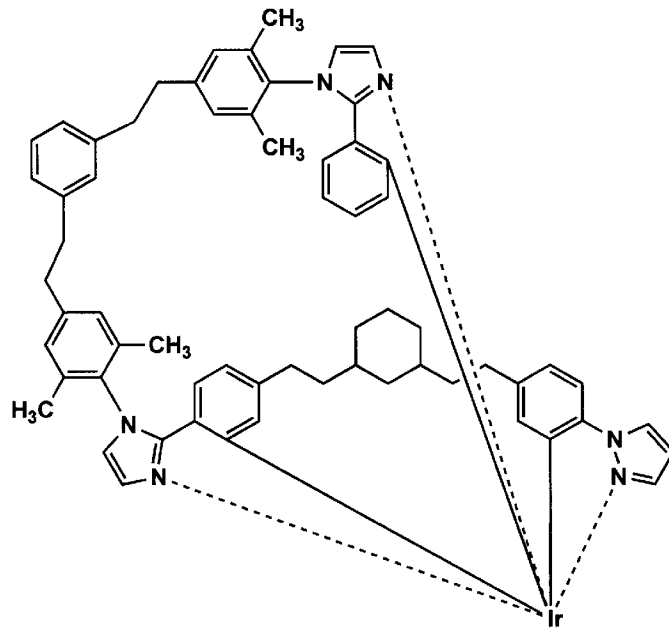
化合物例26



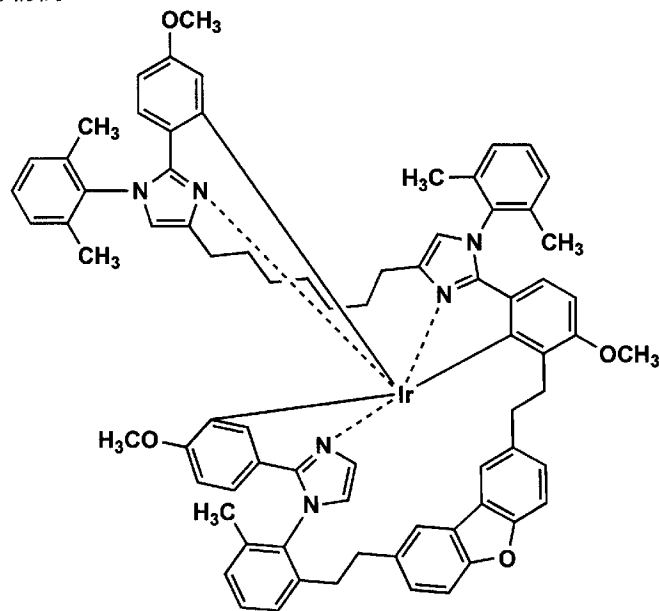
[0092]

[化28]

化合物例27



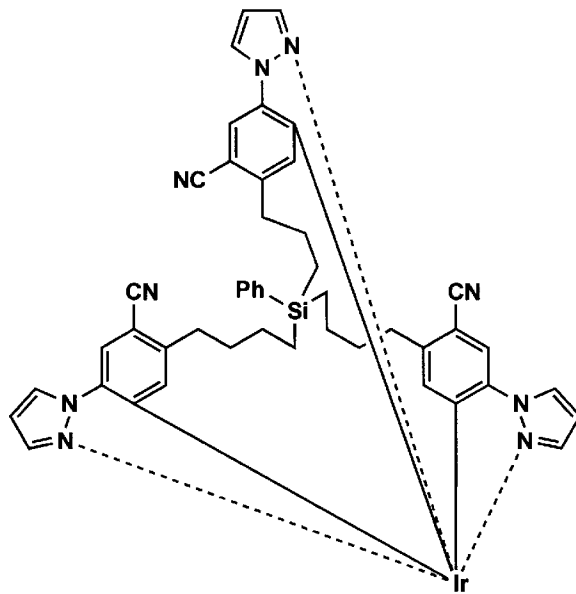
化合物例28



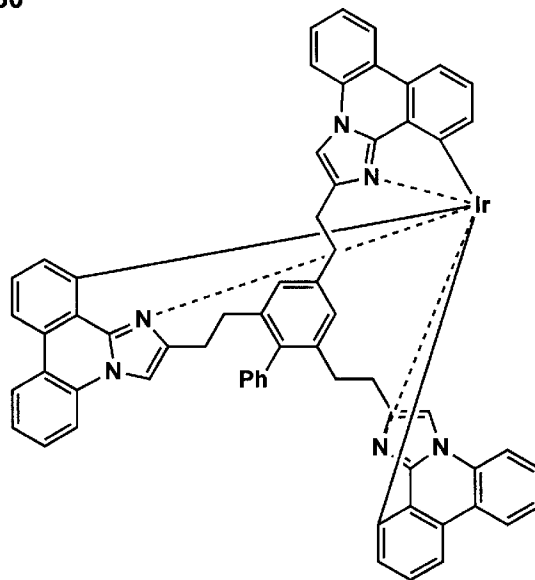
[0093]

[化29]

化合物例29



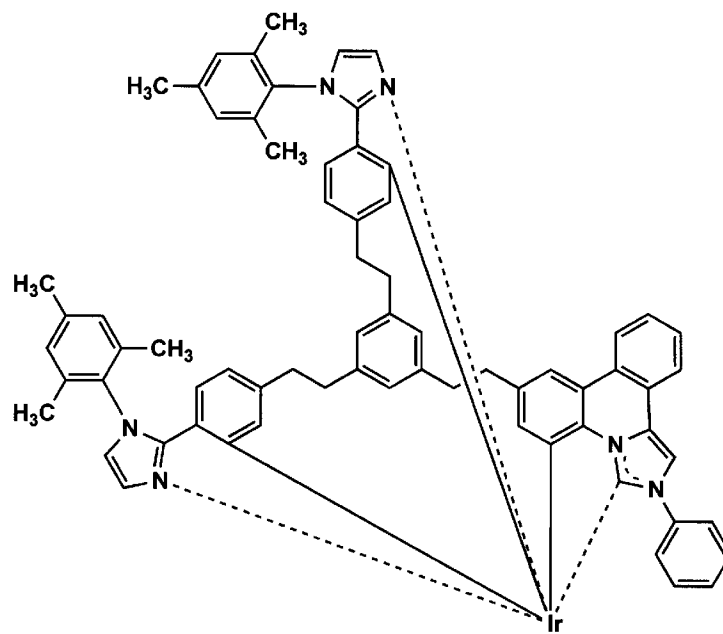
化合物例30



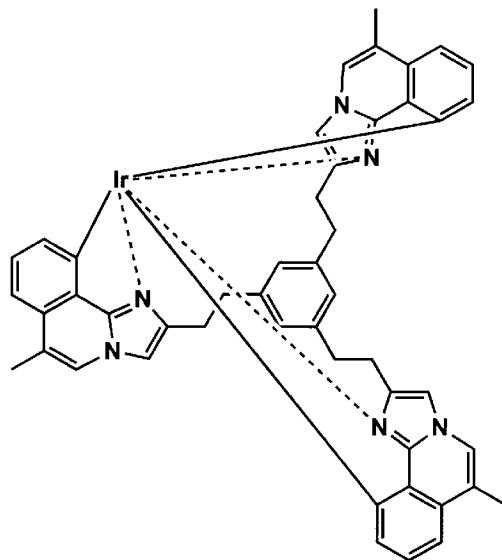
[0094]

[化30]

化合物例31



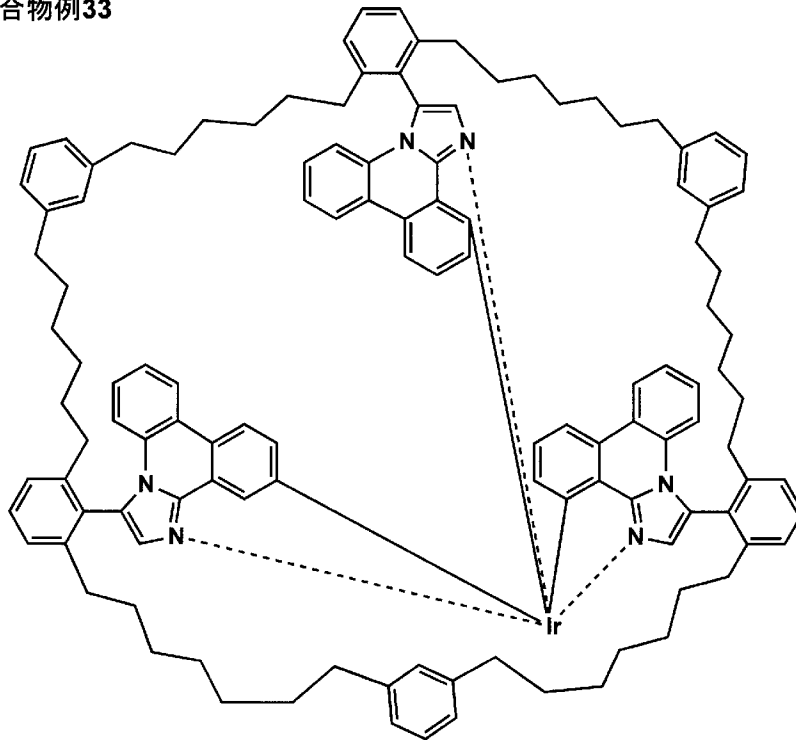
化合物例32



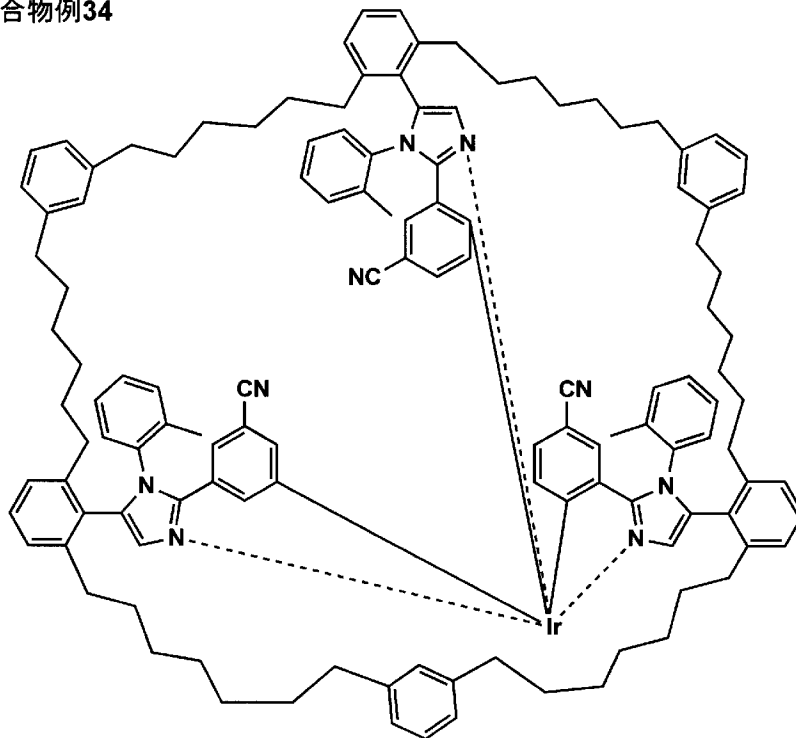
[0095]

[化31]

化合物例33



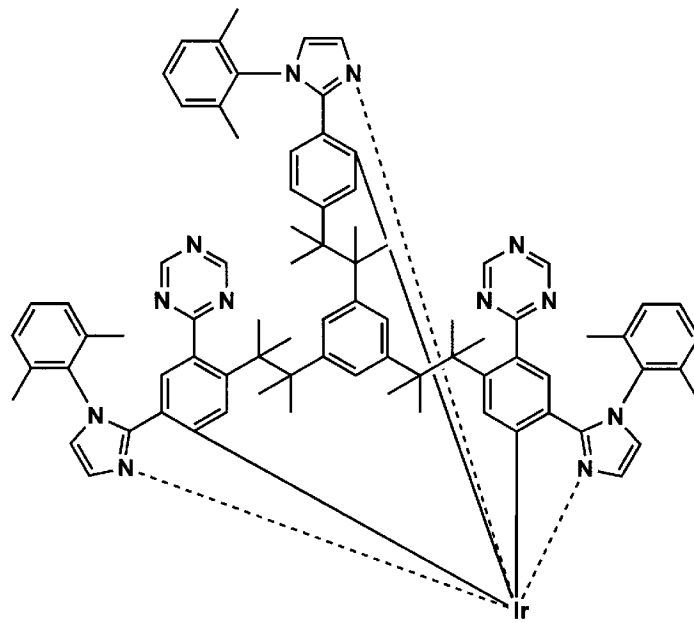
化合物例34



[0096]

[化32]

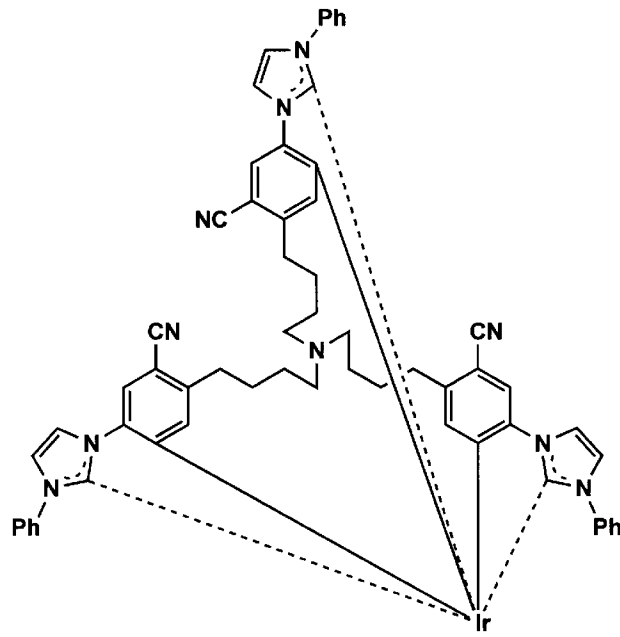
化合物例35



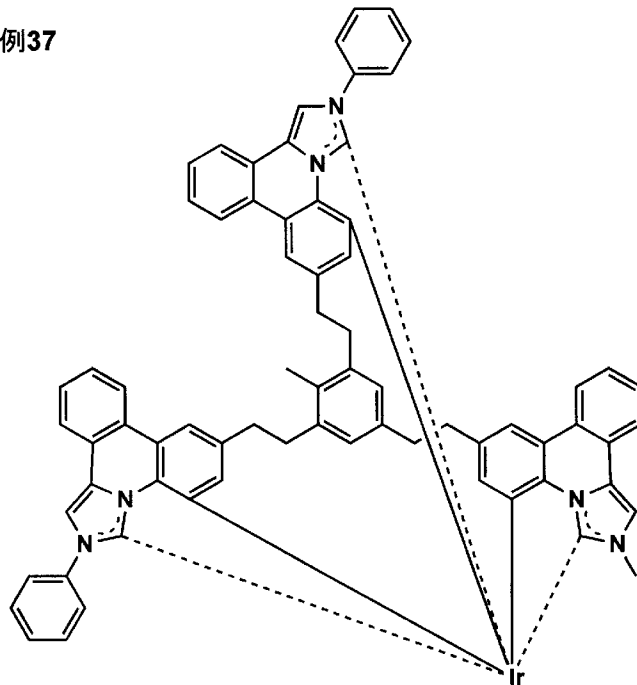
[0097]

[化33]

化合物例36



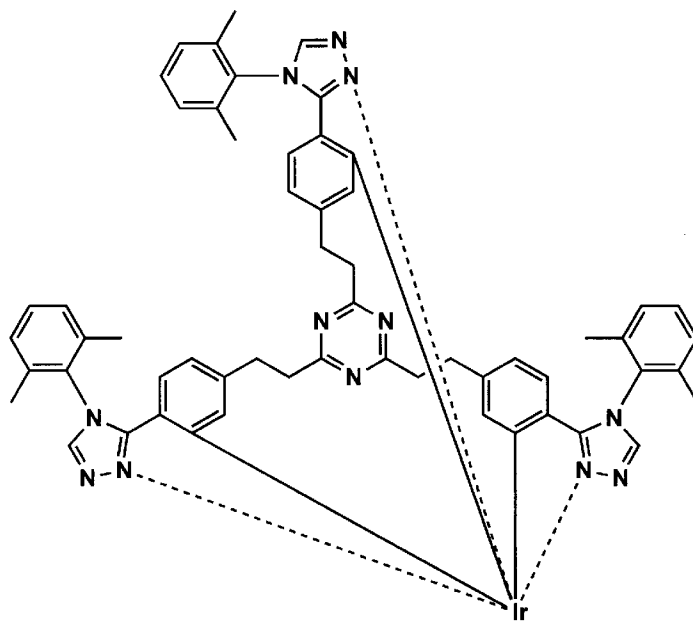
化合物例37



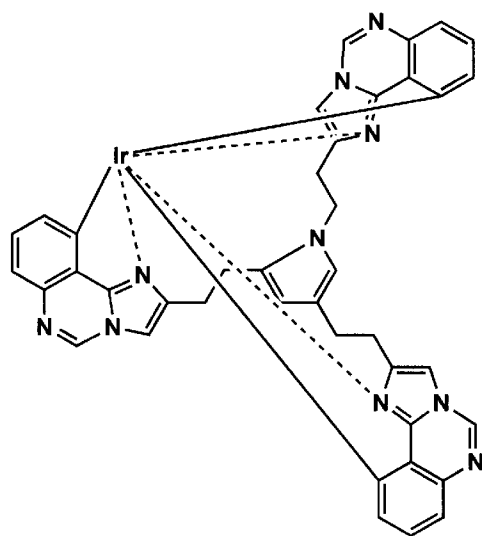
[0098]

[化34]

化合物例38



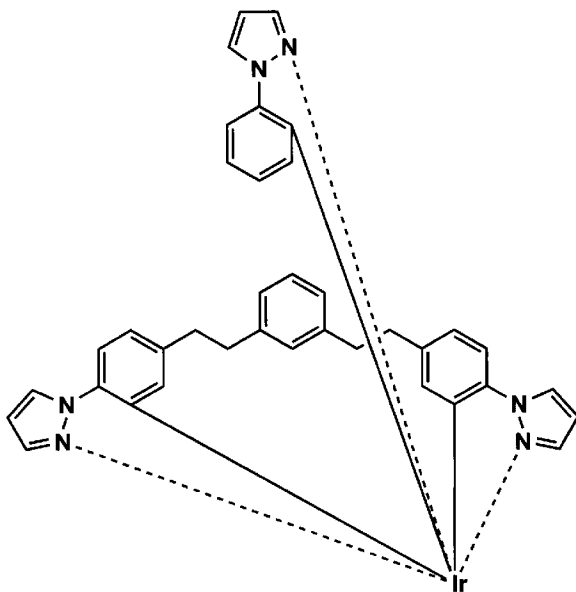
化合物例39



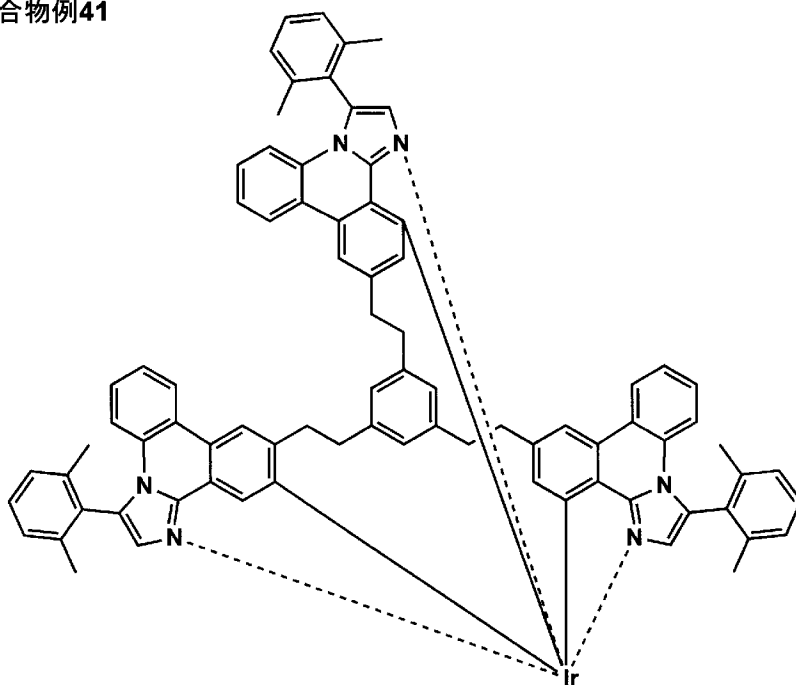
[0099]

[化35]

化合物例40



化合物例41

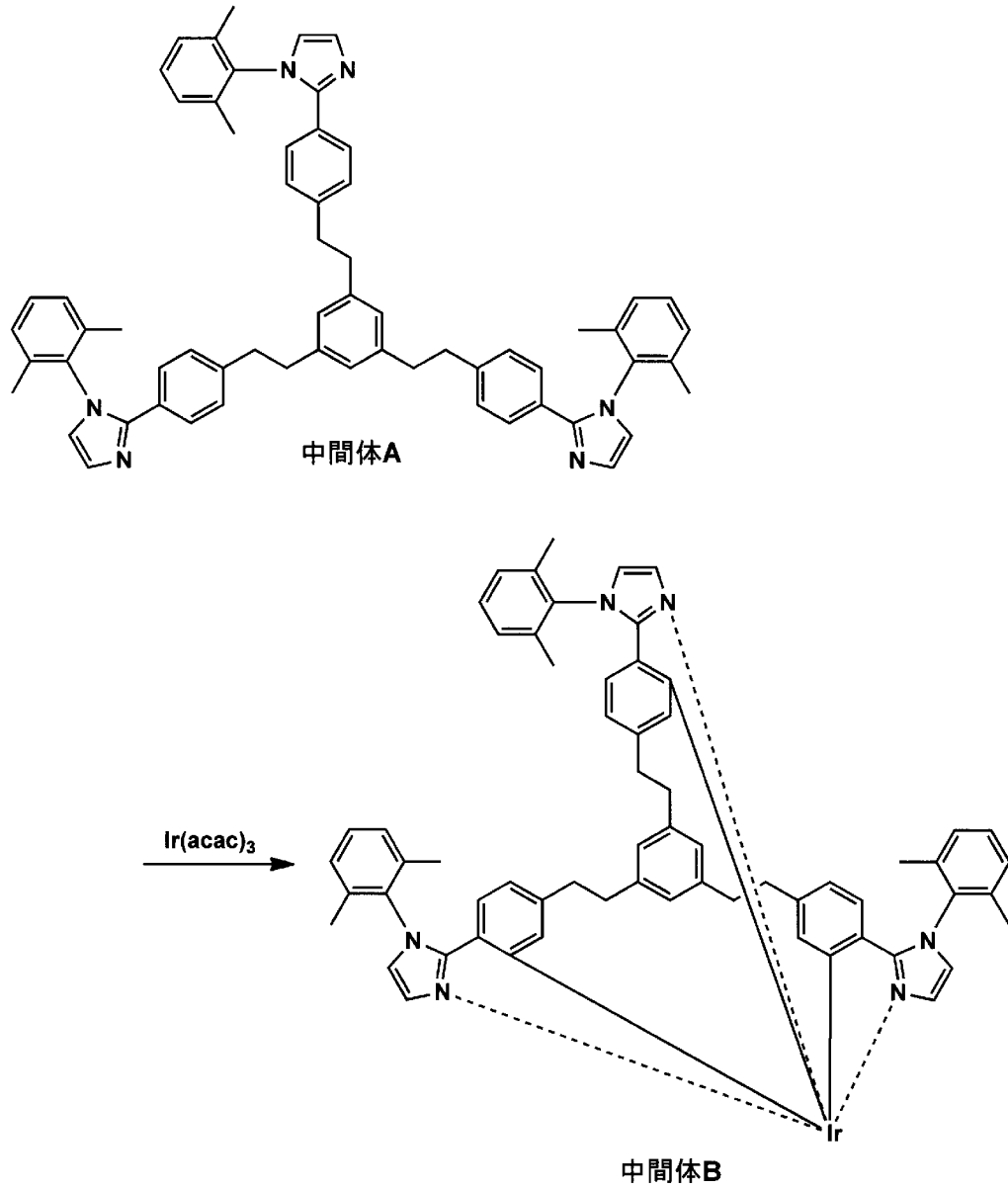


[0100] (1. 1. 3) 合成例

以下に、一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物の合成例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。上記した具体例のうち化合物例1の合成方法を例にとって以下に説明する。

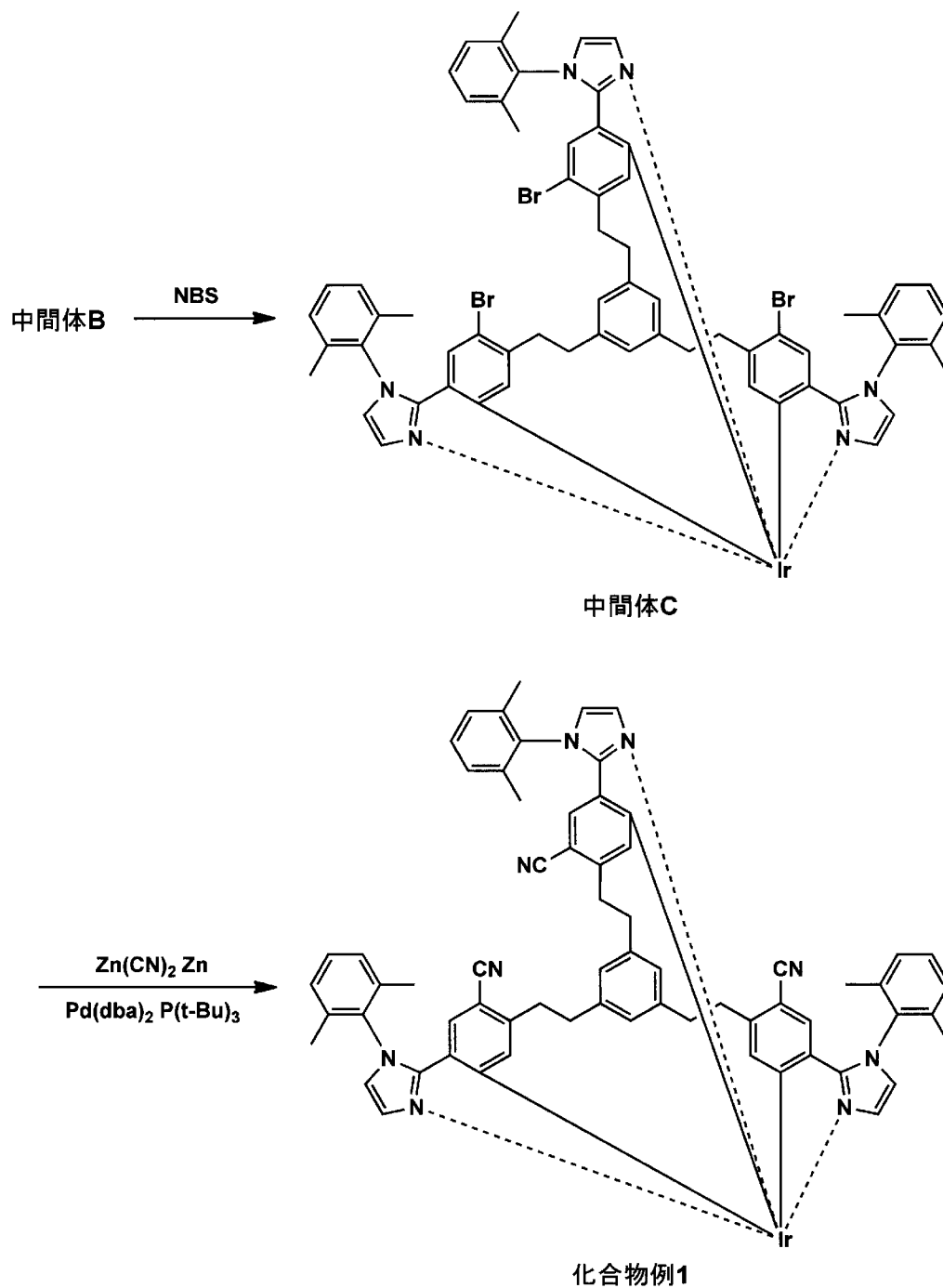
化合物例1は以下のスキームに従って合成することができる。

[0101] [化36]



[0102]

[化37]



[0103] (工程 1)

3頭フラスコに、中間体Aを5g、Ir(acac)<sub>3</sub>を2.6g、エチレングリコールを50ml入れ、窒素雰囲気下にて200℃で24時間加熱攪拌した。

析出した結晶をろ取り、ろ取した結晶をメタノール洗浄して、中間体Bを

1. 1 g 得た。

[0104] (工程 2)

3 頭フラスコに、工程 1 で得られた中間体 B を 1. 1 g、ジメチルホルムアミドを 30 ml 入れ、窒素雰囲気下にて、N-ブロモスクシンイミド 0. 52 g を加えた。

析出した結晶をろ取り、ろ取した結晶をメタノール洗浄した後、水洗し、中間体 C を 1. 0 g 得た。

[0105] (工程 3)

3 頭フラスコに、工程 2 で得られた中間体 C を 1. 0 g、Zn(CN)<sub>2</sub> を 0. 53 g、Pd(dba)<sub>2</sub> を 0. 05 g、Zn を 0. 03 g、ジメチルホルムアミドを 50 ml 入れ、窒素雰囲気下にて 100°C で 7 時間加熱攪拌した。

酢酸エチルと水を加えた後、分液ろうとに移して、有機層を取りだし、これに脱水剤として硫酸マグネシウムを加えた後、硫酸マグネシウムをろ紙で除いた後、ナスフラスコに移して、酢酸エチルを濃縮した。残渣を、シリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン：トルエン）で精製し、化合物例 1 を 0. 3 g 得た。

[0106] (1. 2) 蛍光ドーパント（蛍光性化合物ともいう）

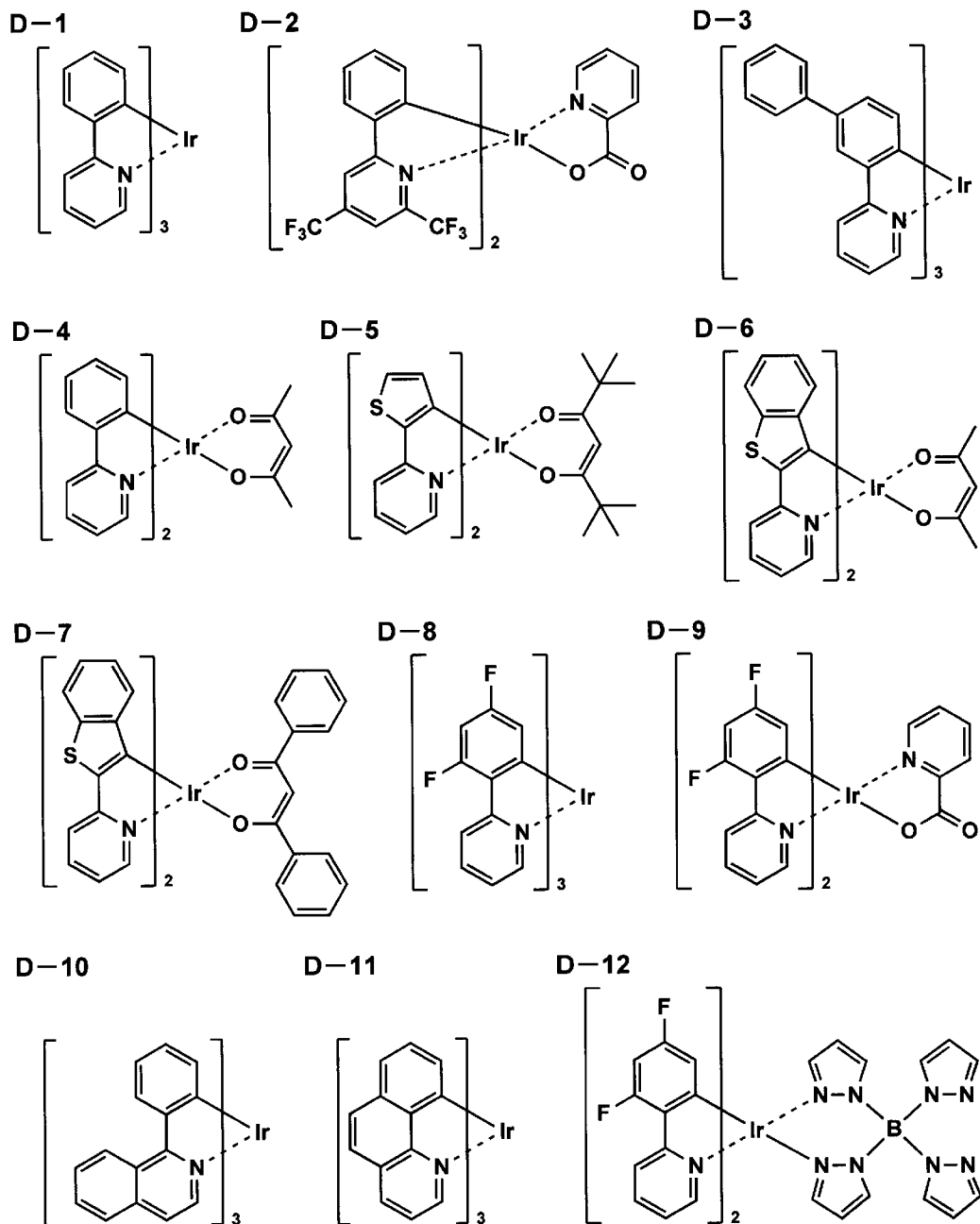
蛍光ドーパントとしては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、または希土類錯体系蛍光体等や、レーザー色素に代表される蛍光量子収率が高い化合物が挙げられる。

[0107] (1. 3) 従来公知のドーパントとの併用

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、リン光ドーパントと蛍光ドーパントを組み合わせ用いてもよい。

[0108] ここで、発光ドーパントとして、本発明に係る一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物と併用して用いてもよい従来公知の発光ドーパントの具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

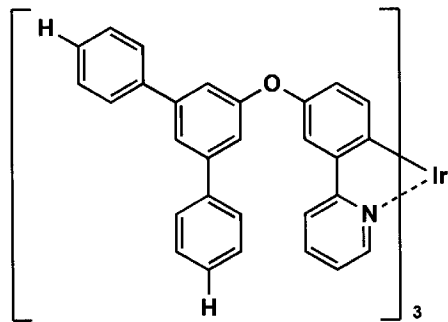
[0109] [化38]



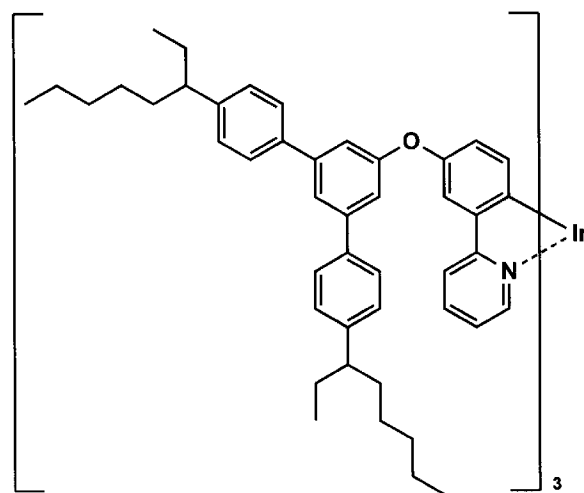
[0110]

[化39]

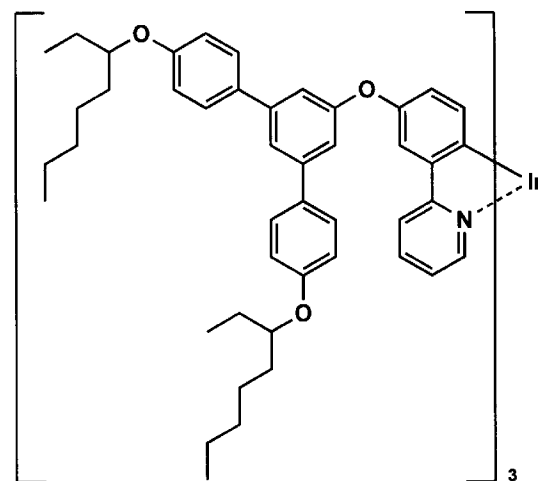
D-13



D-14



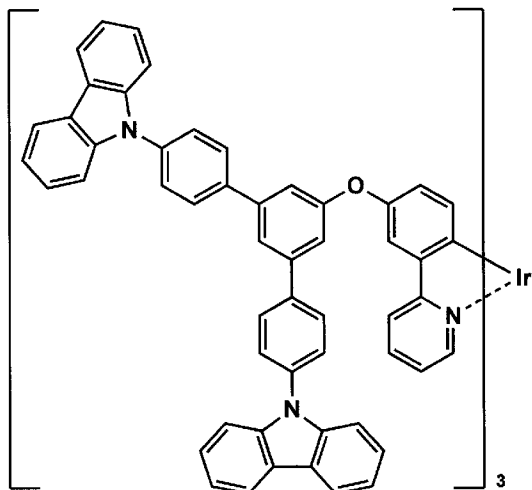
D-15



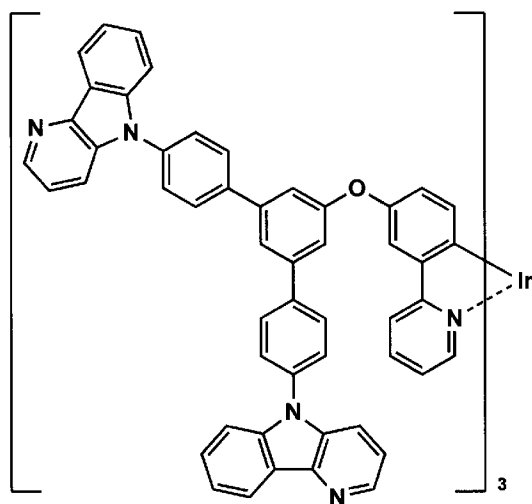
[0111]

[化40]

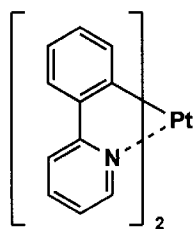
D-16



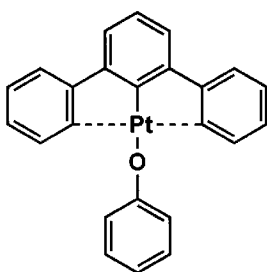
D-17



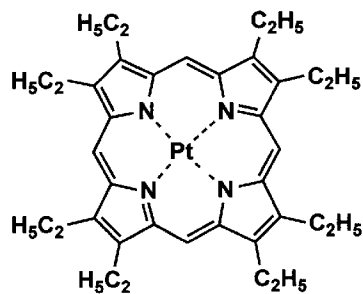
D-18



D-19



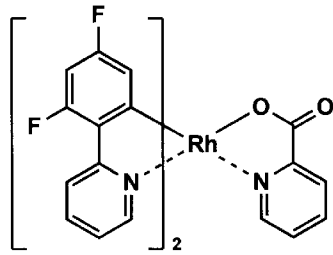
D-20



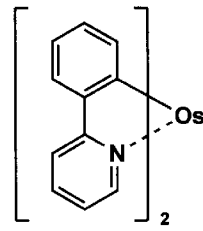
[0112]

[化41]

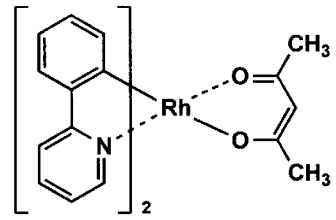
D-21



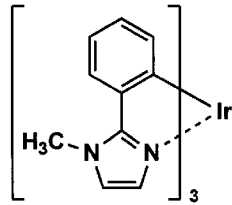
D-22



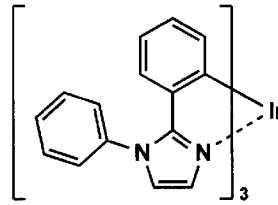
D-23



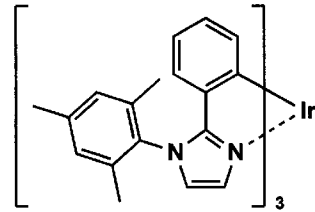
D-24



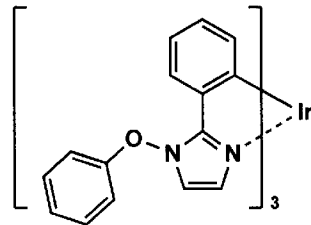
D-25



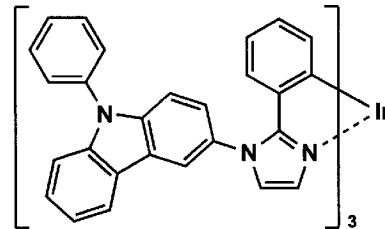
D-26



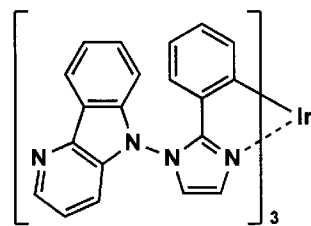
D-27



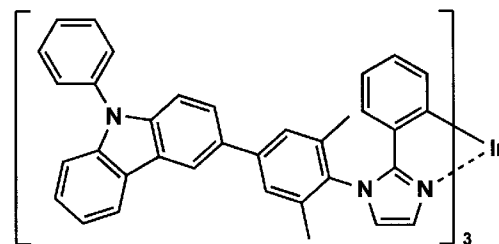
D-28



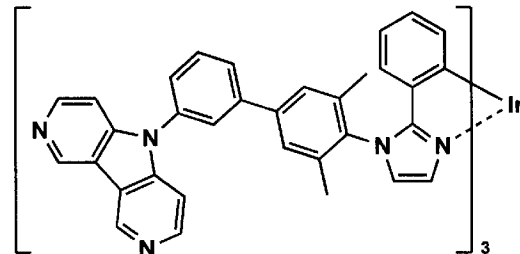
D-29



D-30



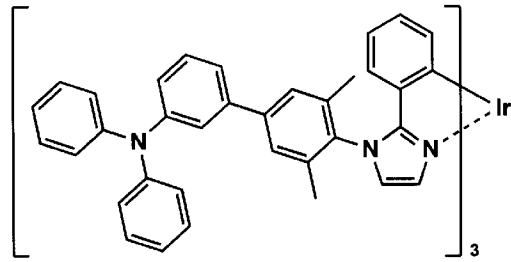
D-31



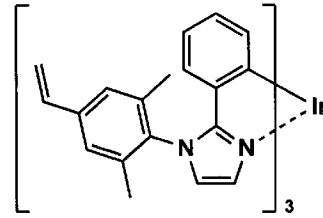
[0113]

[化42]

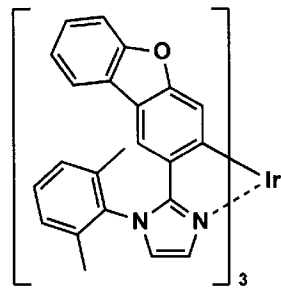
D-32



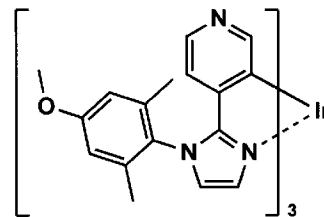
D-33



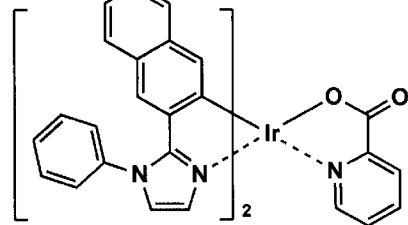
D-34



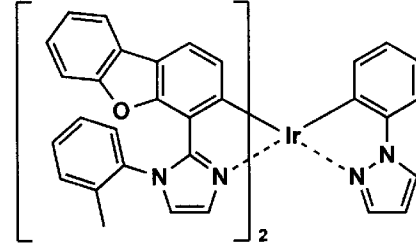
D-35



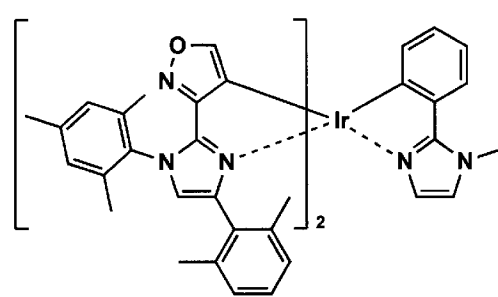
D-36



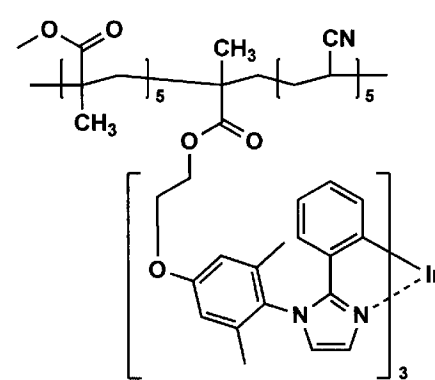
D-37



D-38



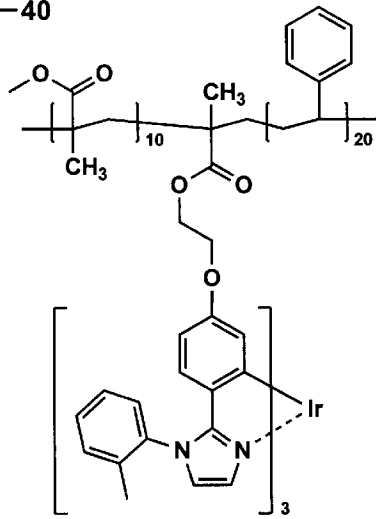
D-39



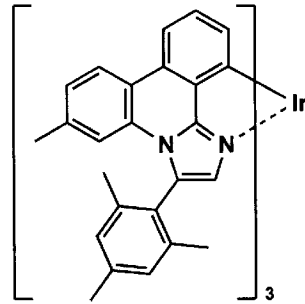
[0114]

[化43]

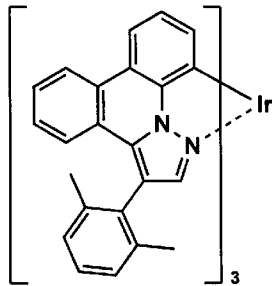
D-40



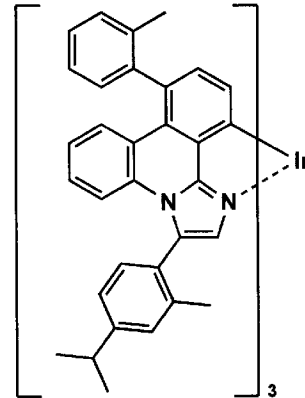
D-41



D-42

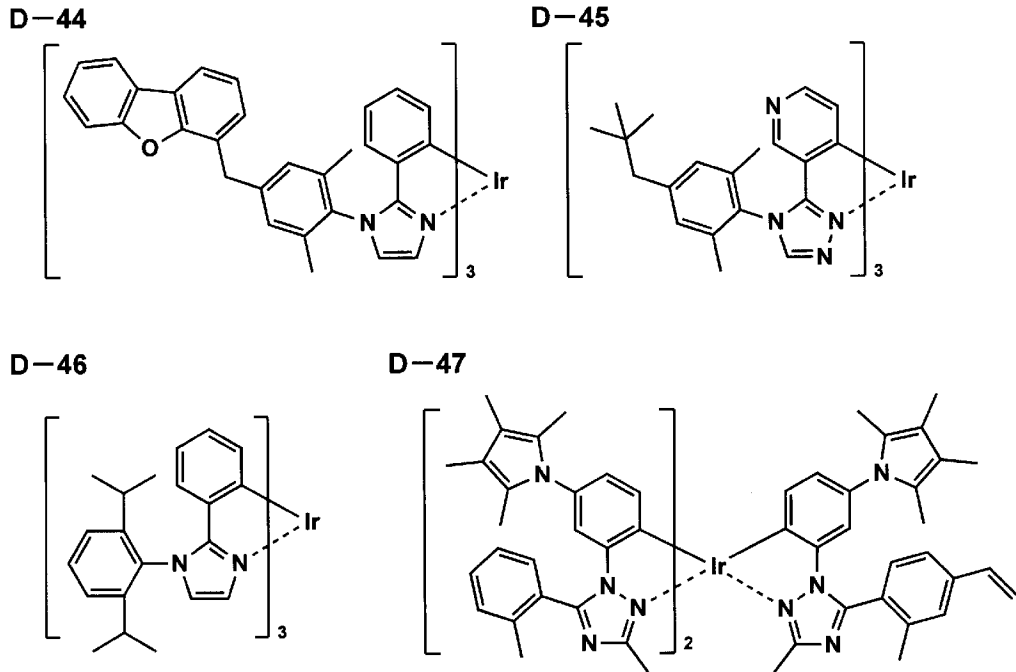


D-43



[0115]

[化44]



[0116] (2) 発光ホスト化合物 (発光ホスト、ホスト化合物ともいう)

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。

[0117] 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。

[0118] 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<sub>g</sub>(ガラス

転移温度)である化合物が好ましい。

[0119] また、本発明においては、従来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。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。また、前記リン光ドーパントとして用いられる本発明の金属錯体及び／または従来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。

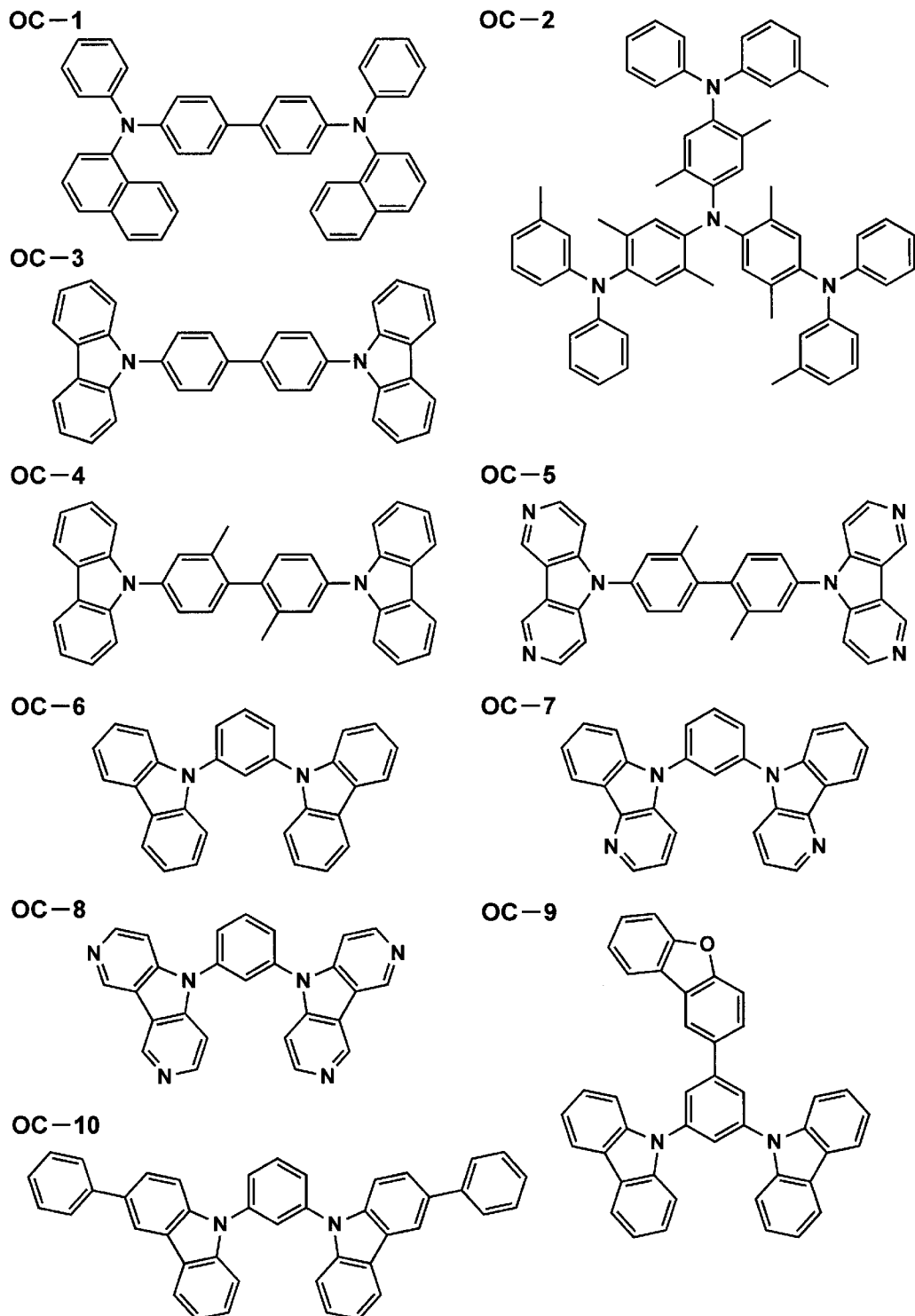
[0120] また、本発明に用いられる発光ホストとしては、低分子化合物でも、繰り返し単位をもつ高分子化合物でもよく、ビニル基やエポキシ基のような重合性を有する低分子化合物（重合性発光ホスト）でもよく、このような化合物を一種または複数種用いても良い。

[0121] 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。

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。

[0122] 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。

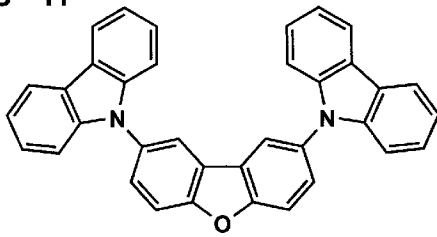
[0123] [化45]



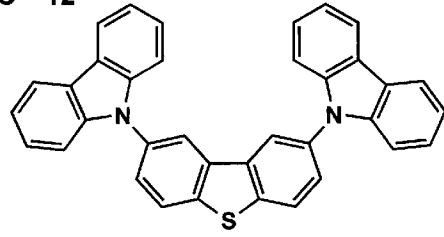
[0124]

[化46]

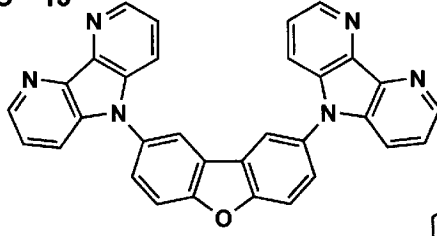
OC-11



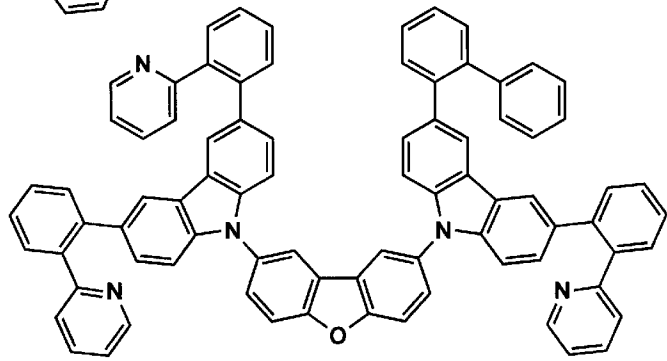
OC-12



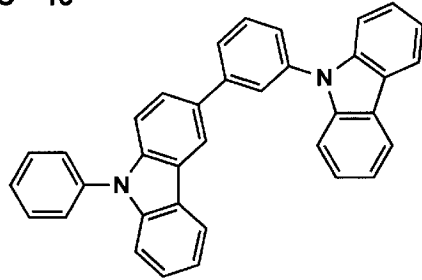
OC-13



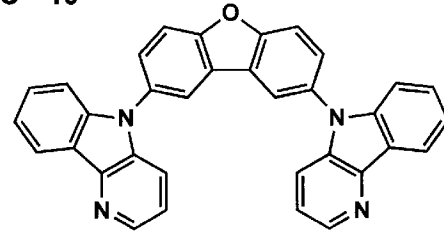
OC-14



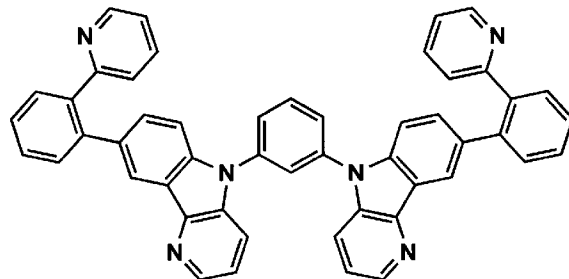
OC-15



OC-16



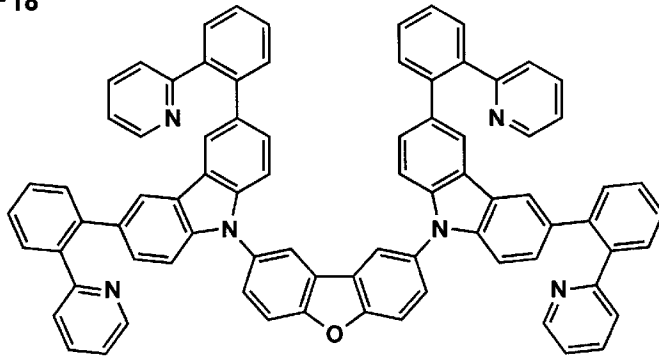
OC-17



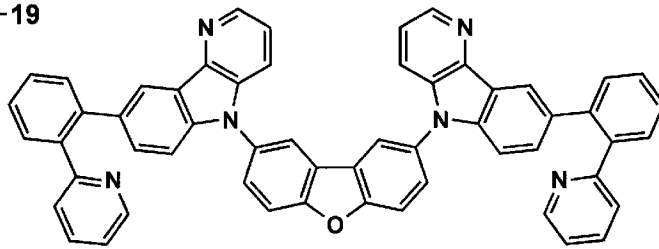
[0125]

[化47]

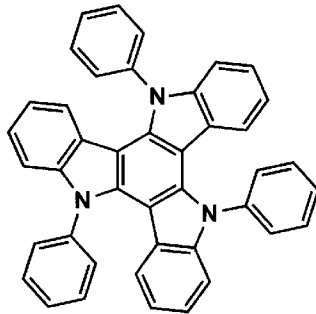
OC-18



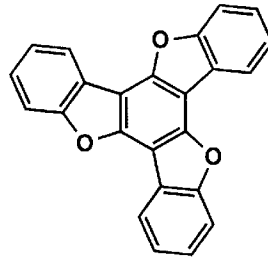
OC-19



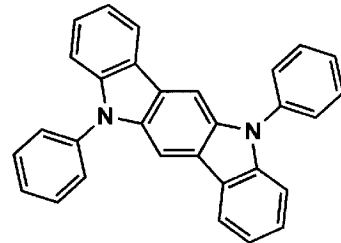
OC-20



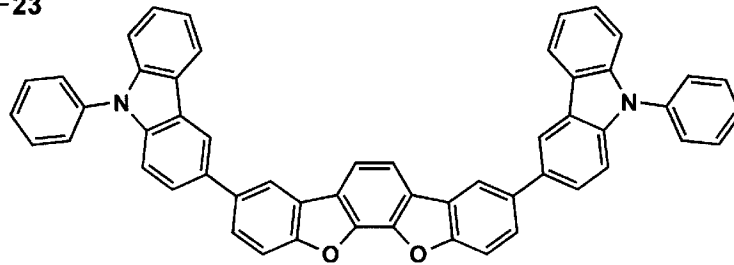
OC-21



OC-22



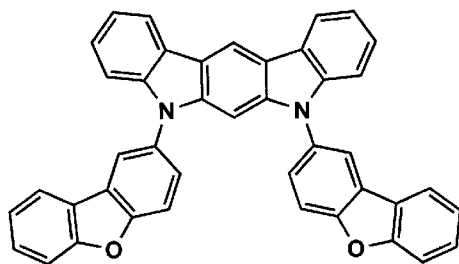
OC-23



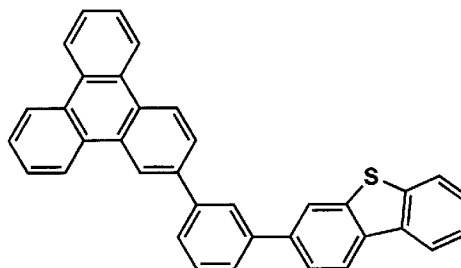
[0126]

[化48]

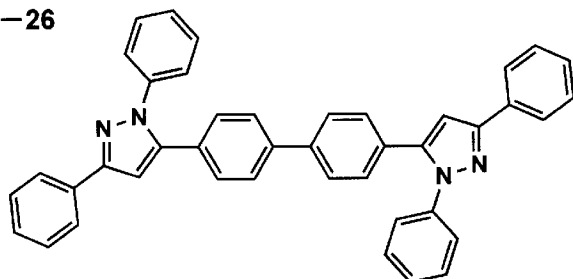
OC-24



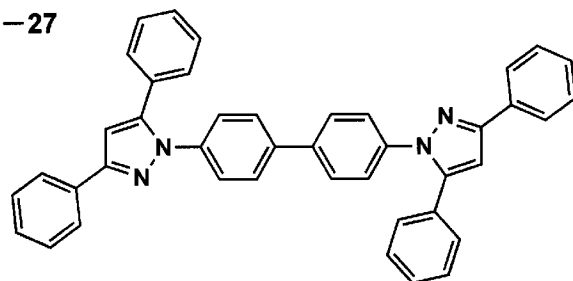
OC-25



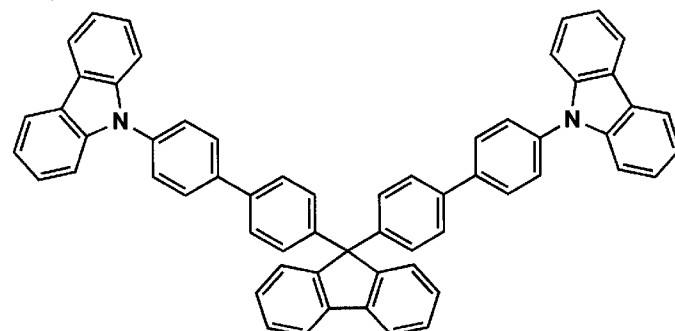
OC-26



OC-27



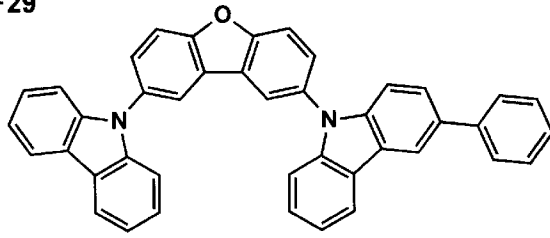
OC-28



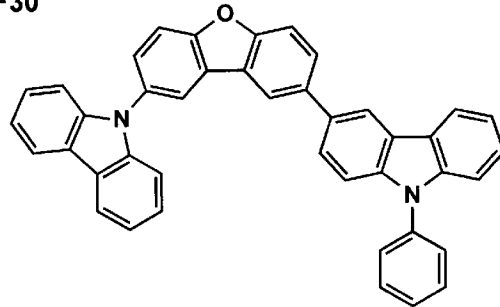
[0127]

[化49]

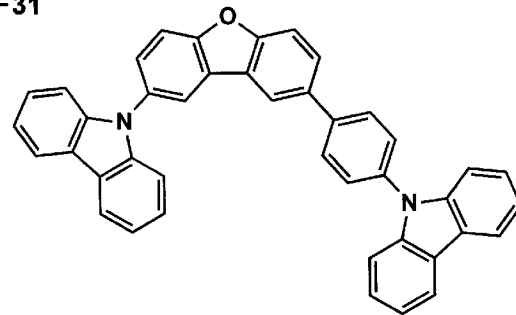
OC-29



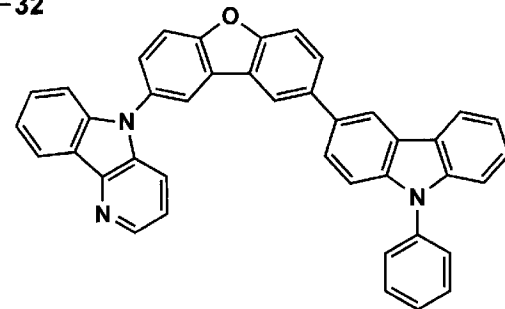
OC-30



OC-31



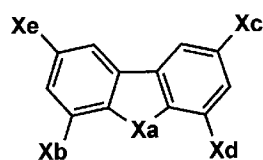
OC-32



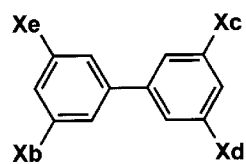
[0128] 更に、本発明の有機EL素子の発光層の発光ホストとして特に好ましいものは、下記一般式(B)又は一般式(E)で表される化合物である。

[0129] [化50]

一般式(B)



一般式(E)



[0130] 一般式 (B) 及び (E) 中、 $X_a$  は O 又は S を表し、 $X_b$ 、 $X_c$ 、 $X_d$  及び  $X_e$  は、各々水素原子、置換基又は下記一般式 (C) で表される基を表し、 $X_b$ 、 $X_c$ 、 $X_d$  及び  $X_e$  のうち少なくとも 1 つは下記一般式 (C) で表される基を表し、下記一般式 (C) で表される基のうち少なくとも 1 つは  $A_r$  がカルバゾリル基を表す。

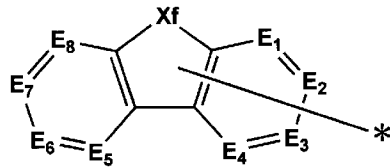
[0131] 一般式 (C)



[0132] 一般式 (C) 中、 $L_4$  は芳香族炭化水素環又は芳香族複素環から導出される 2 価の連結基を表す。 $n$  は 0 ~ 3 の整数を表し、 $n$  が 2 以上の場合、複数の  $L_4$  は同じでも異なってもよい。 $*$  は一般式 (B) 又は (E) との連結部位を表す。 $A_r$  は下記一般式 (D) で表される基を表す。

[0133] [化51]

一般式(D)



[0134] 一般式 (D) 中、 $X_f$  は N ( $R''$ )、O 又は S を表し、 $E_1 \sim E_8$  は C ( $R''_1$ ) 又は N を表し、 $R''$  及び  $R''_1$  は水素原子、置換基又は一般式 (C) における  $L_4$  との連結部位を表す。 $*$  は一般式 (C) における  $L_4$  との連結部位を表す。

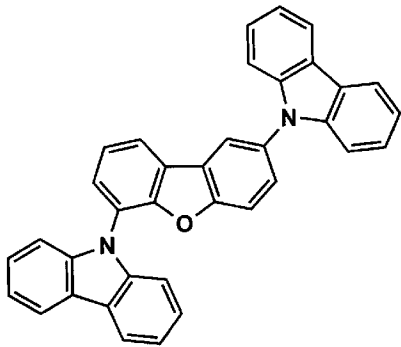
[0135] 上記一般式 (B) で表される化合物においては、好ましくは、 $X_b$ 、 $X_c$ 、 $X_d$  及び  $X_e$  のうち少なくとも 2 つが一般式 (C) で表され、より好ましくは  $X_c$  が一般式 (C) で表され且つ一般式 (C) の  $A_r$  が置換基を有していてもよいカルバゾリル基を表す。

[0136] 以下に、本発明の有機 EL 素子の発光層のホスト化合物 (発光ホストともいう) として好ましく用いられる一般式 (B) で表さ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。

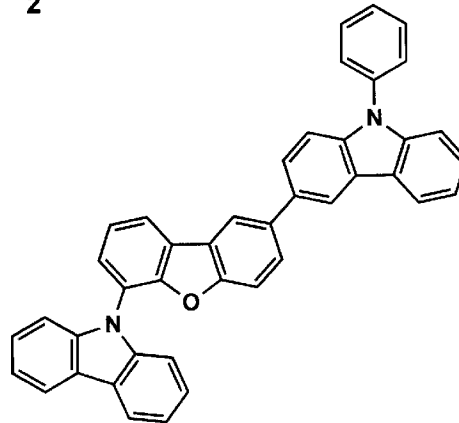
[0137]

[化52]

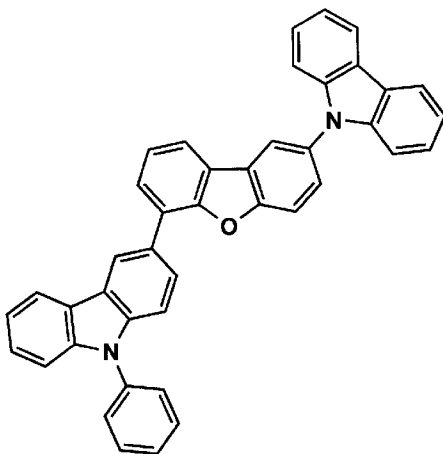
1



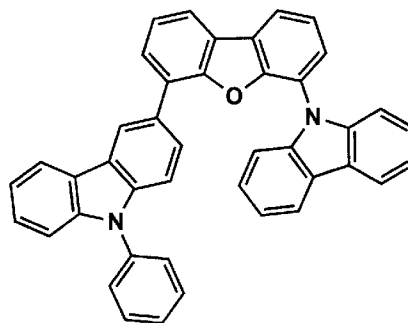
2



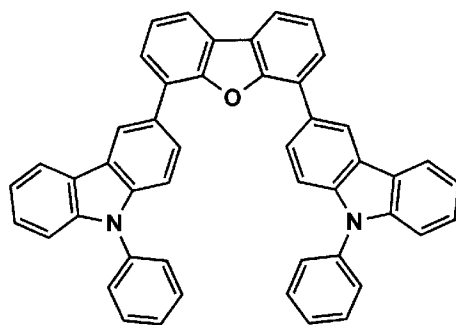
3



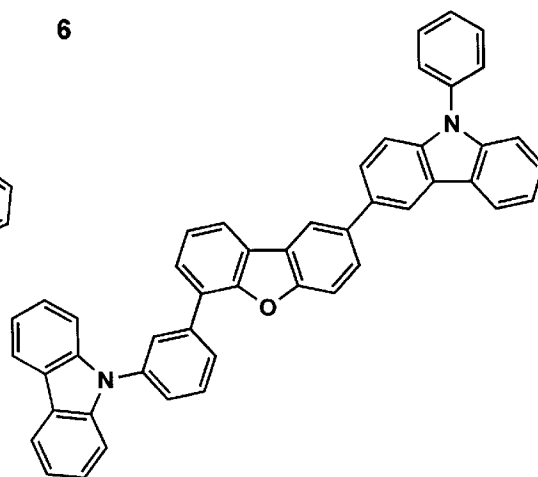
4



5



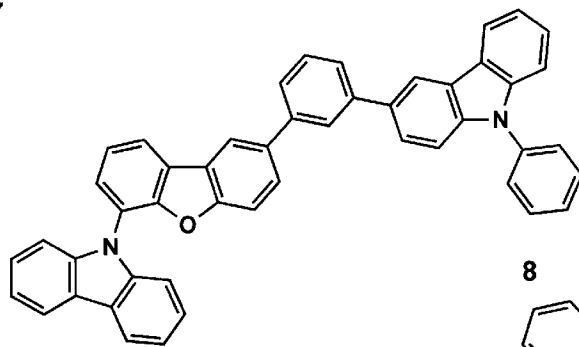
6



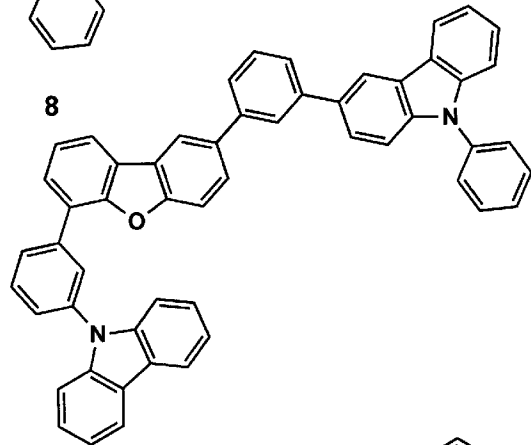
[0138]

[化53]

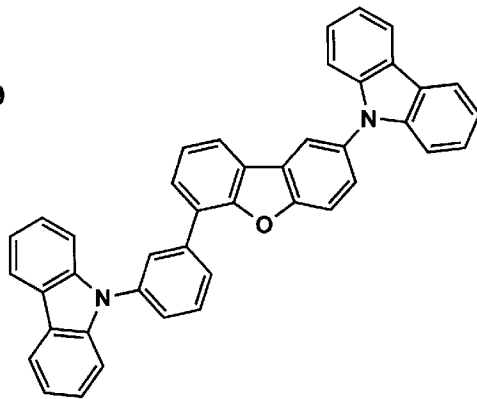
7



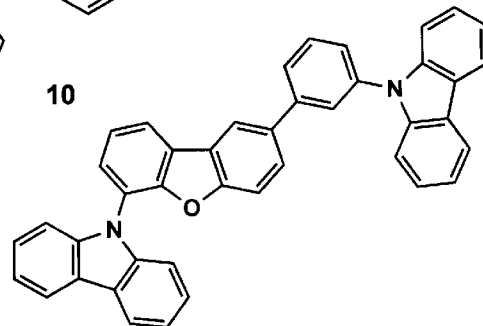
8



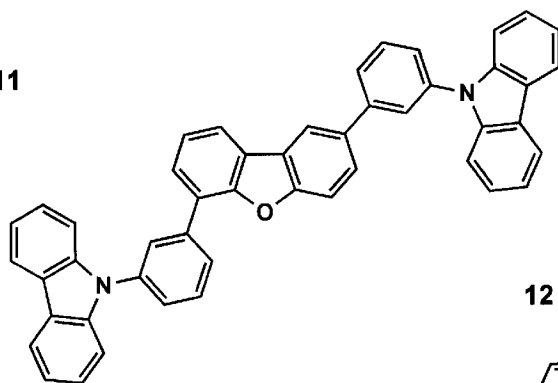
9



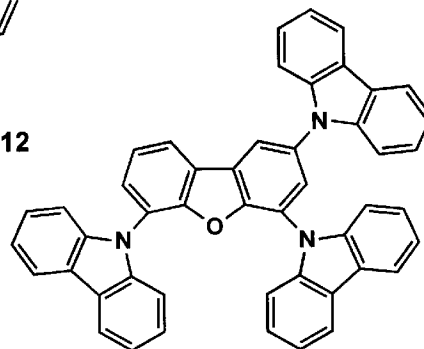
10



11



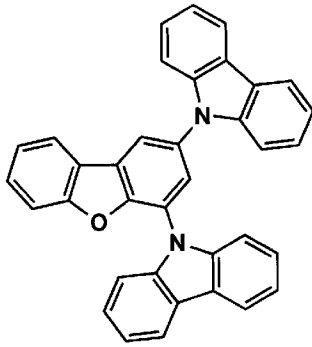
12



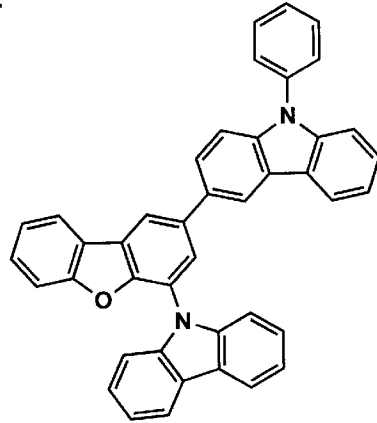
[0139]

[化54]

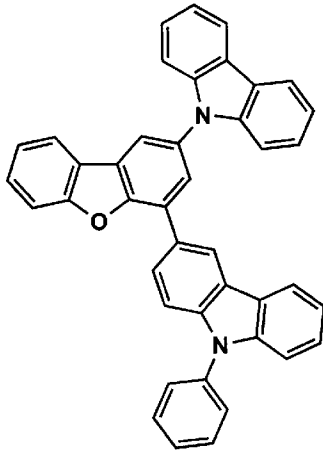
13



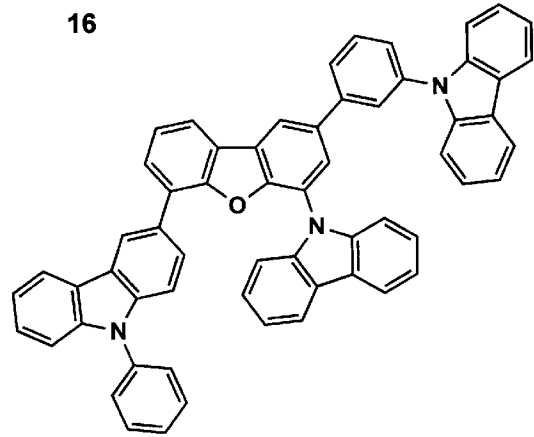
14



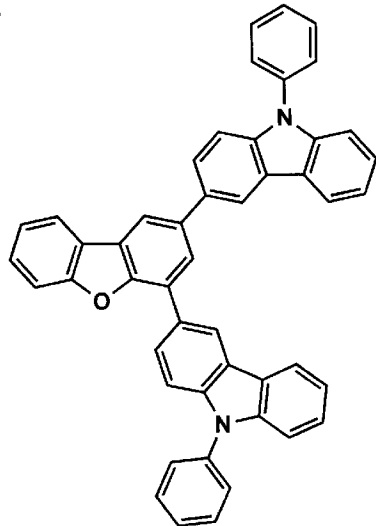
15



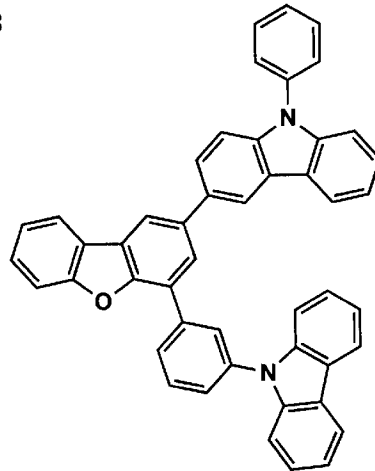
16



17



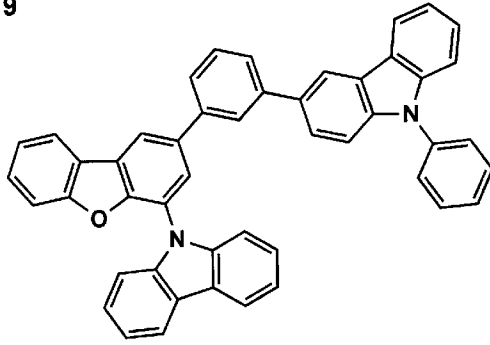
18



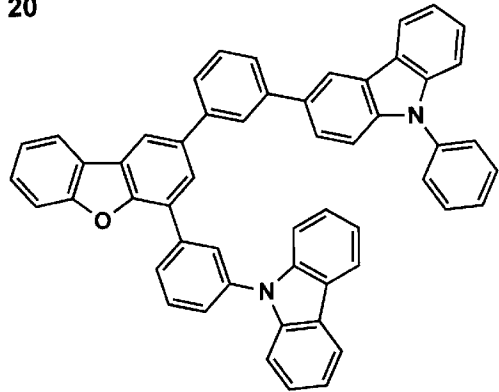
[0140]

[化55]

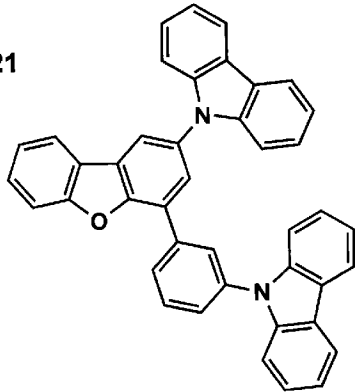
19



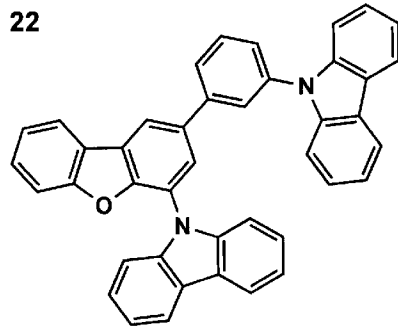
20



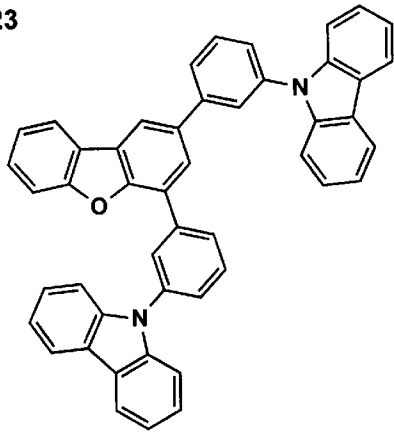
21



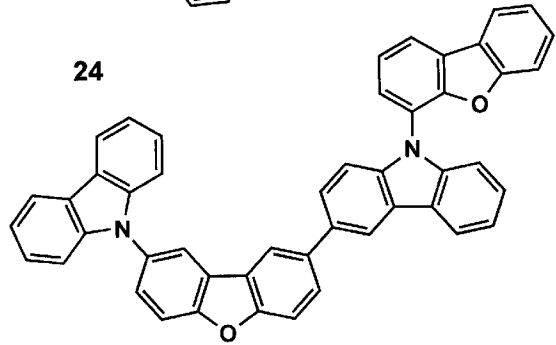
22



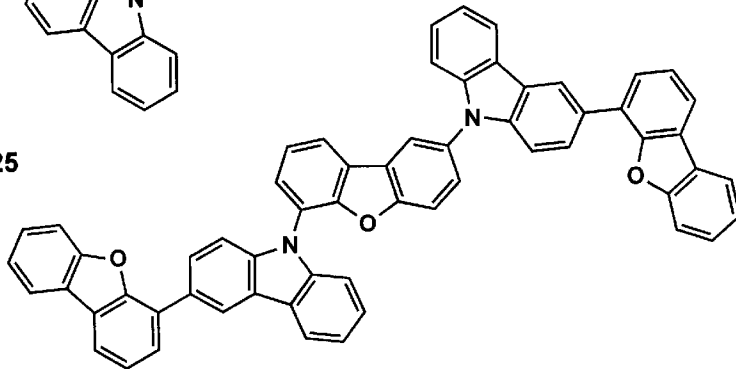
23



24



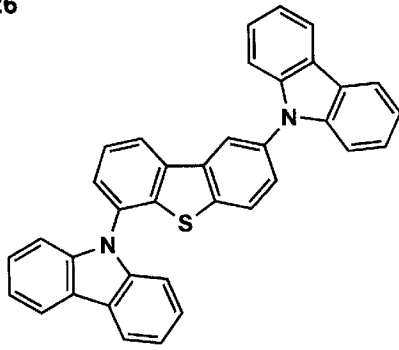
25



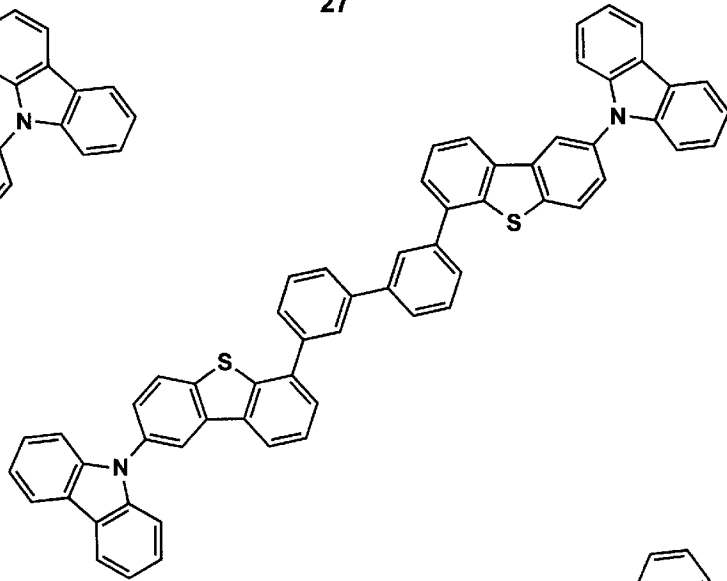
[0141]

[化56]

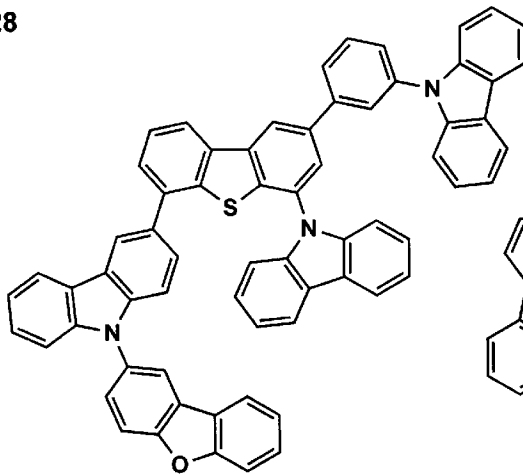
26



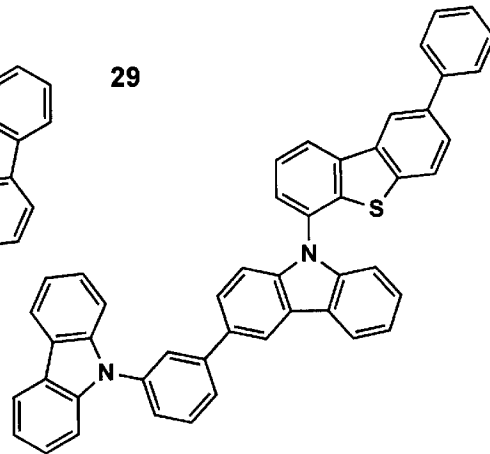
27



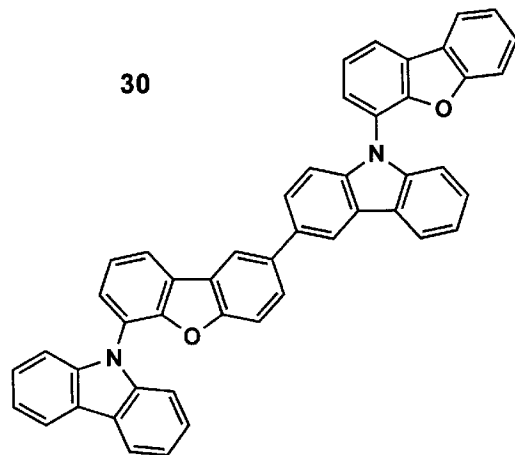
28



29



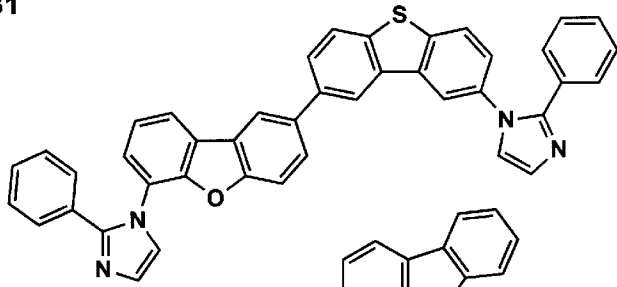
30



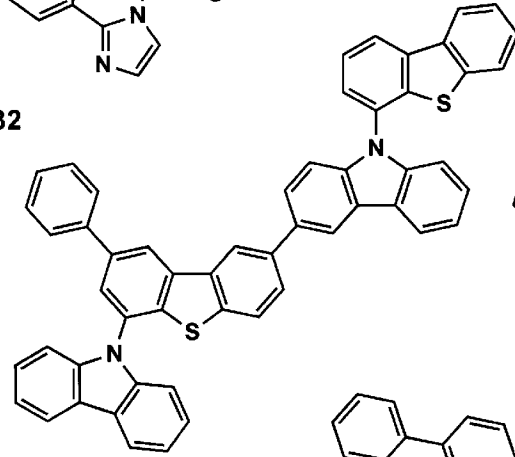
[0142]

[化57]

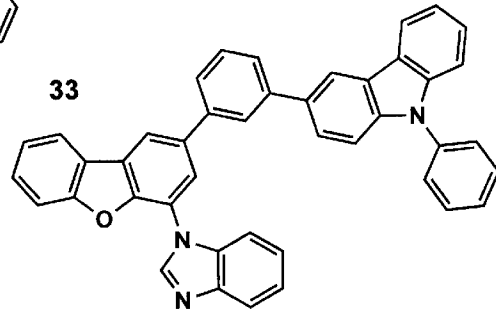
31



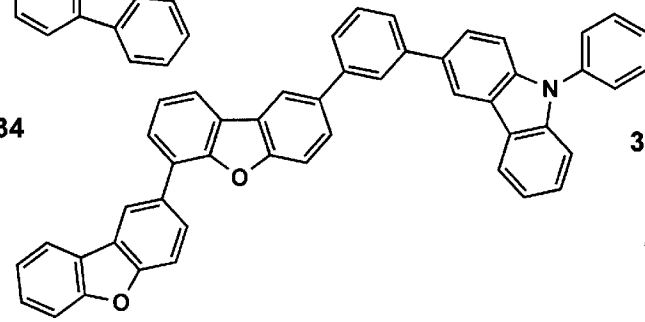
32



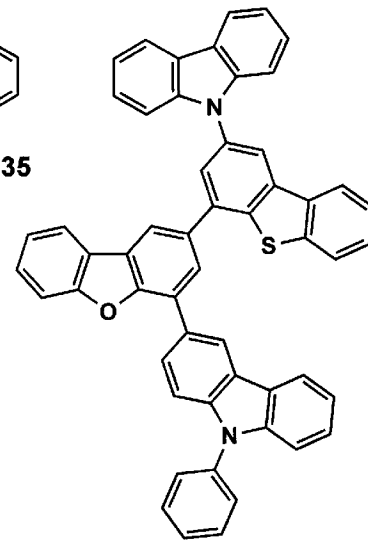
33



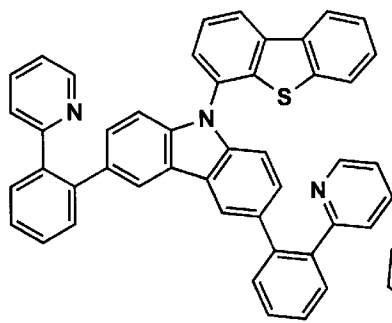
34



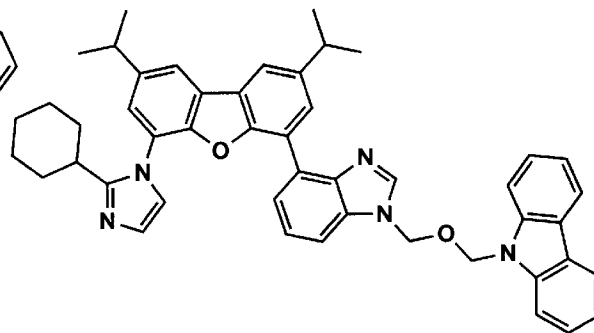
35



36



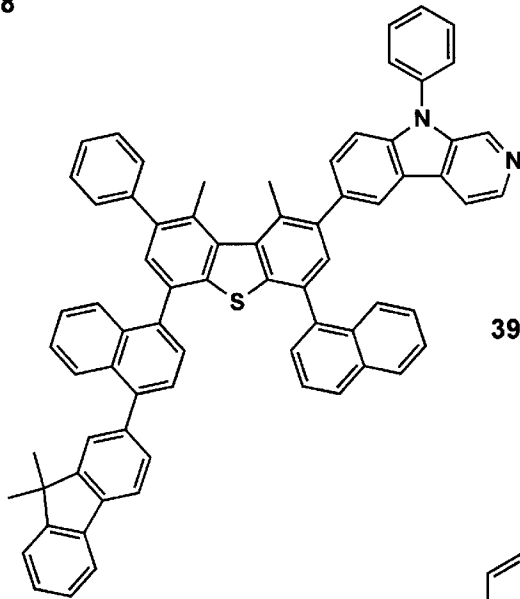
37



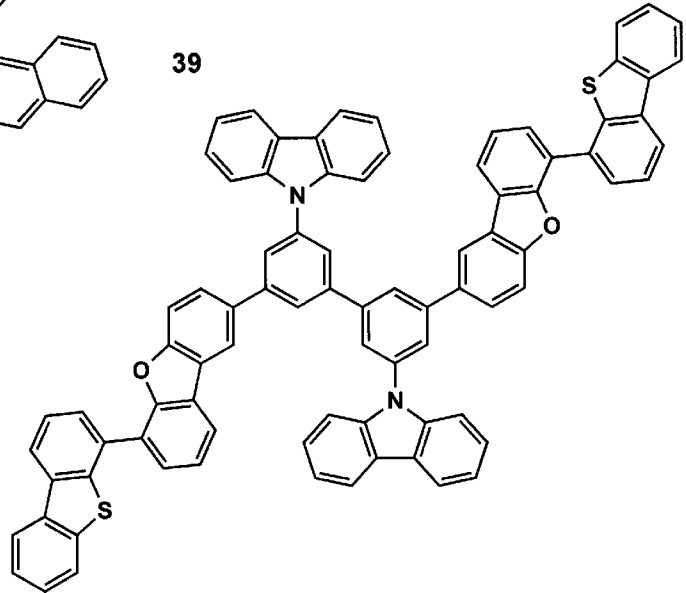
[0143]

[化58]

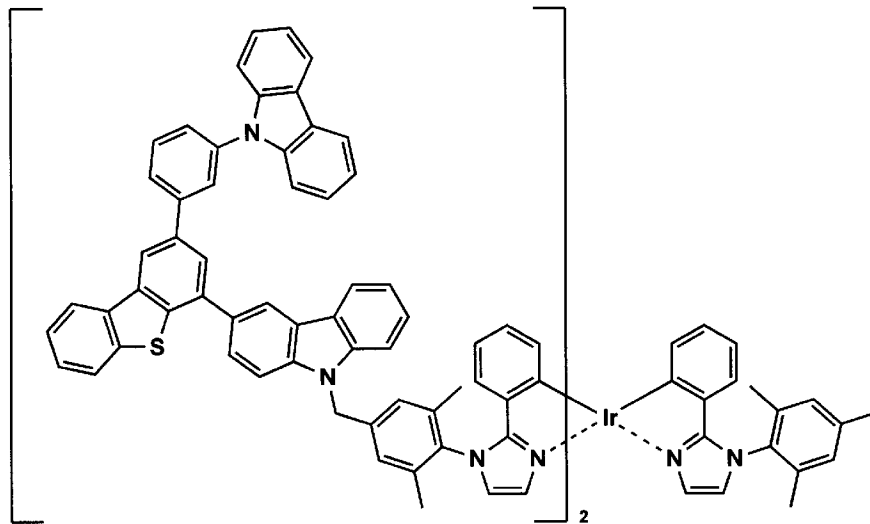
38



39

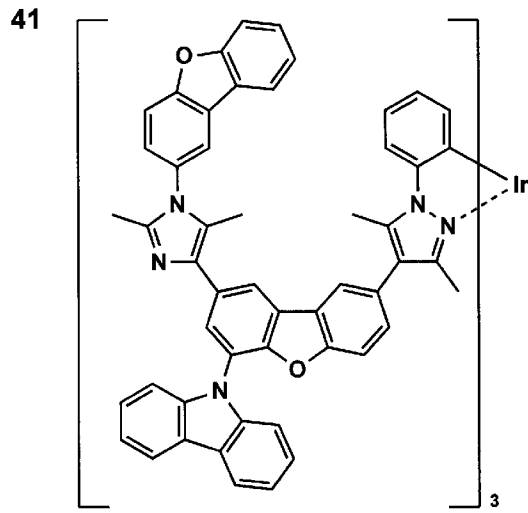


40

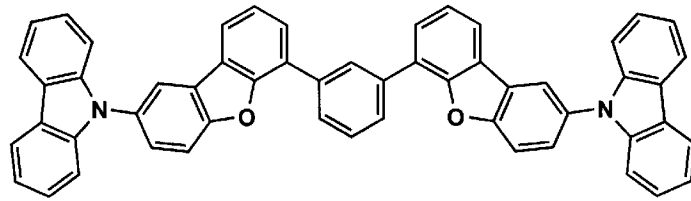


[0144]

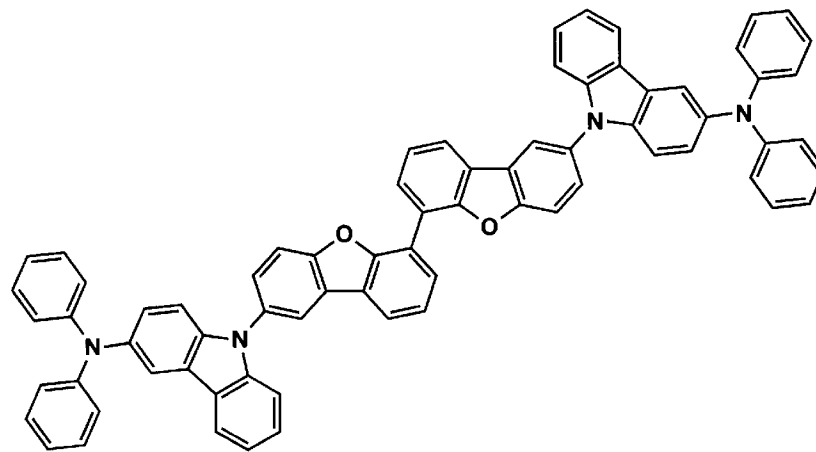
[化59]



42



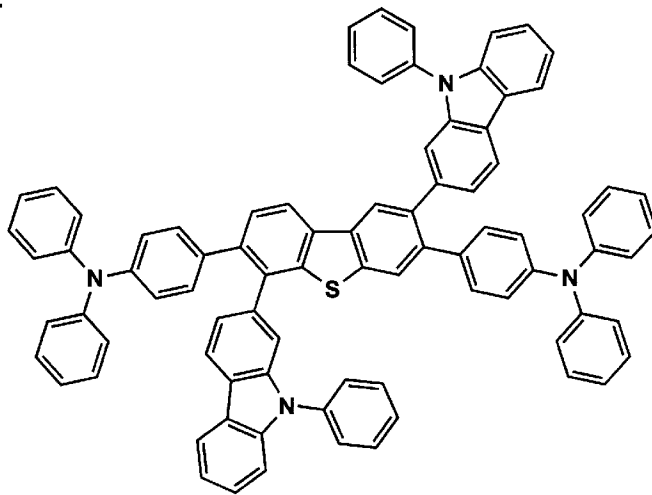
43



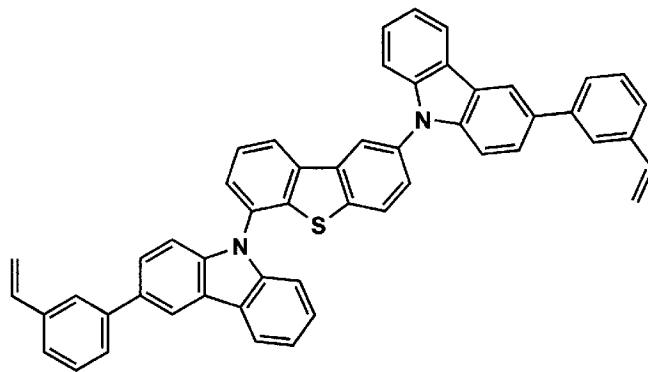
[0145]

[化60]

44

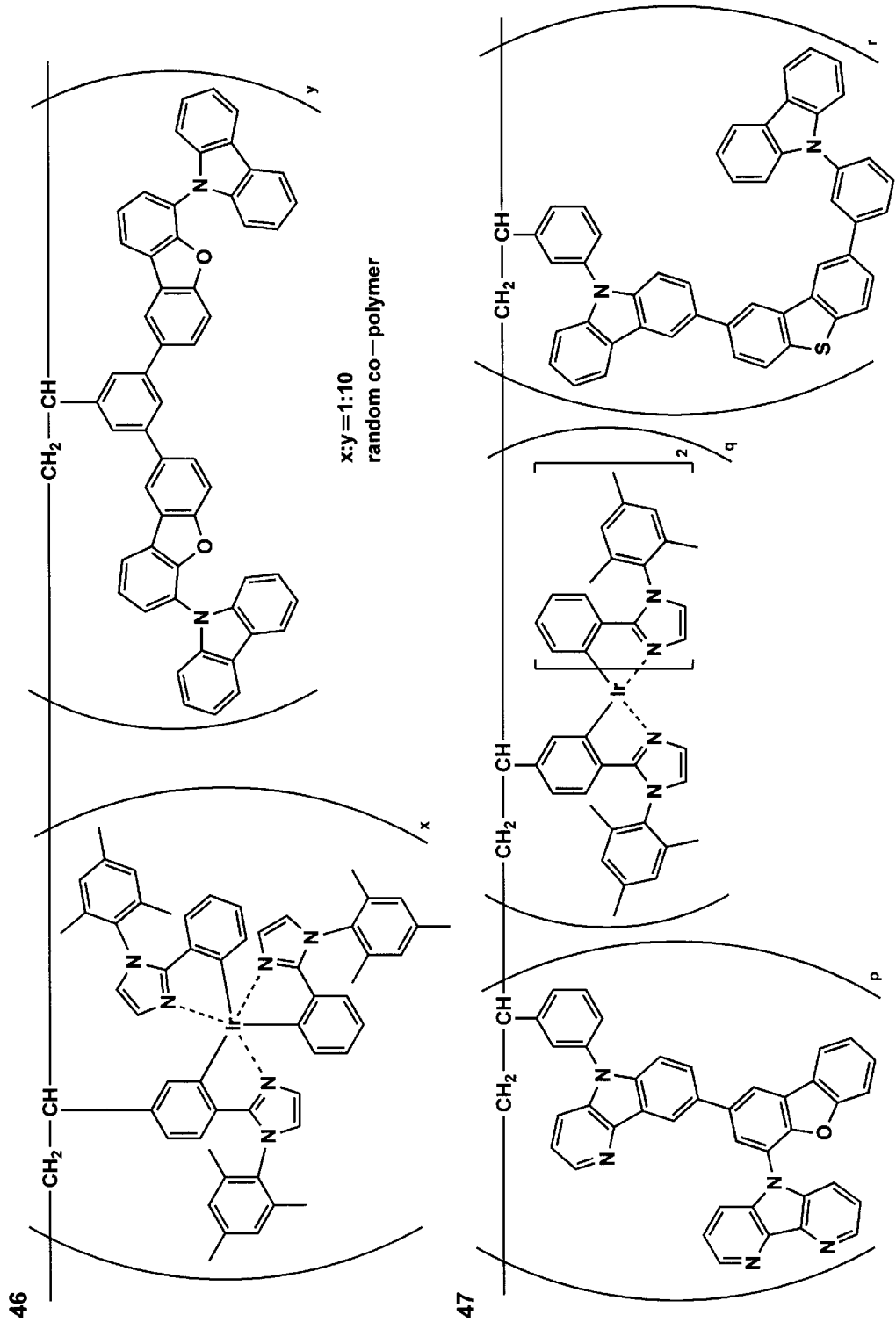


45



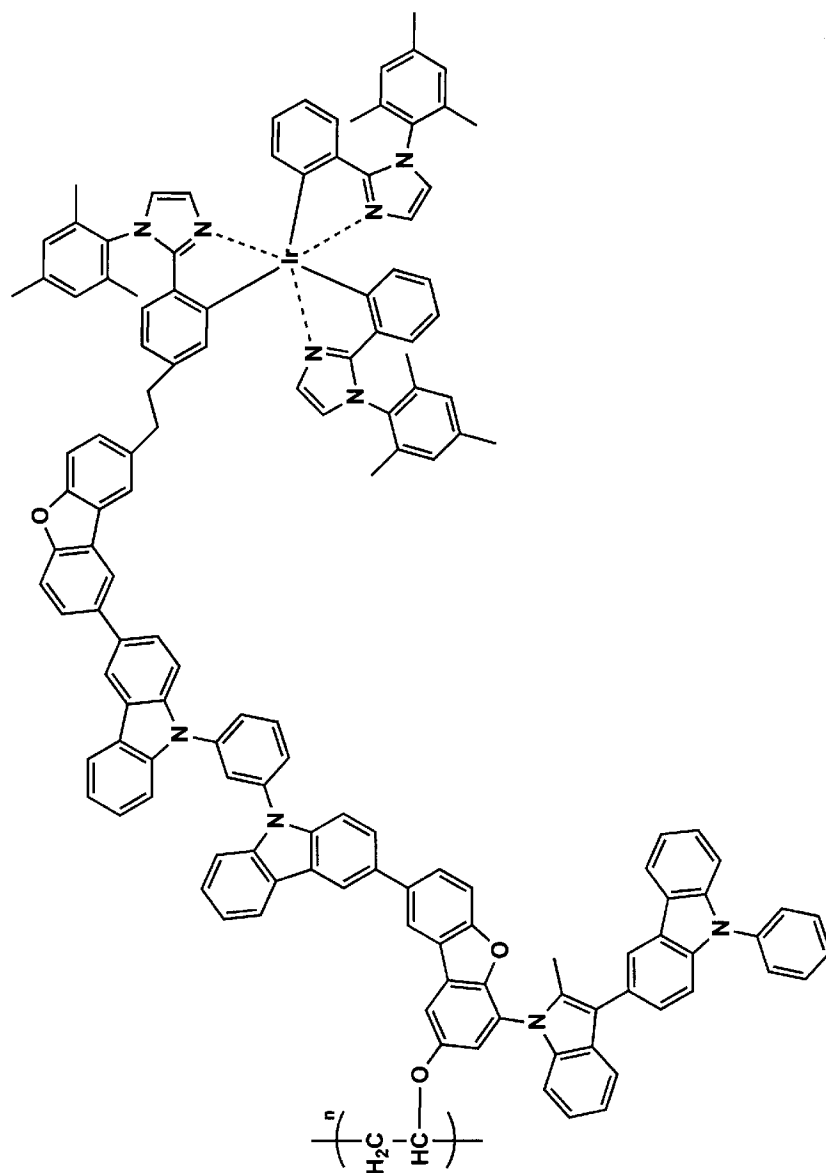
[0146]

[化61]



[0147]

[化62]

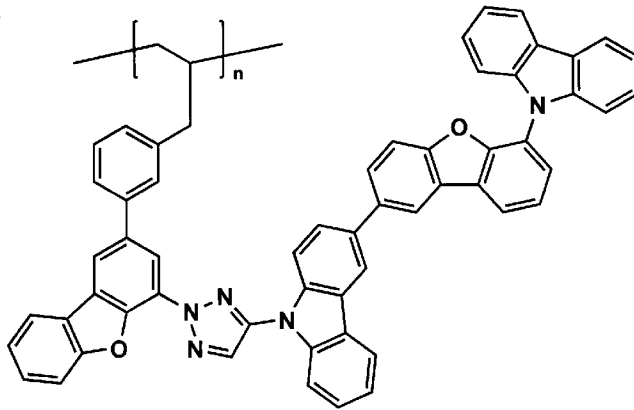


48

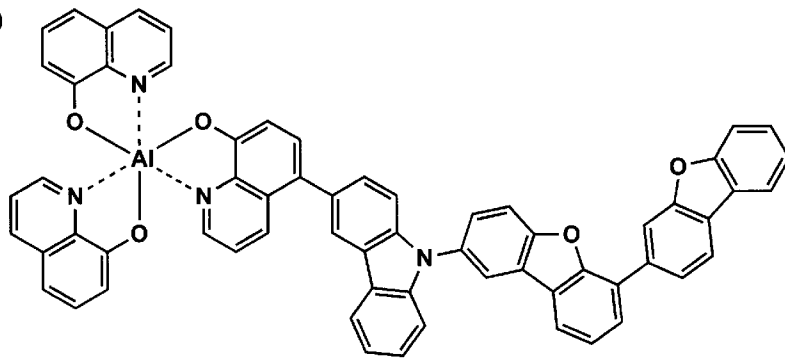
[0148]

[化63]

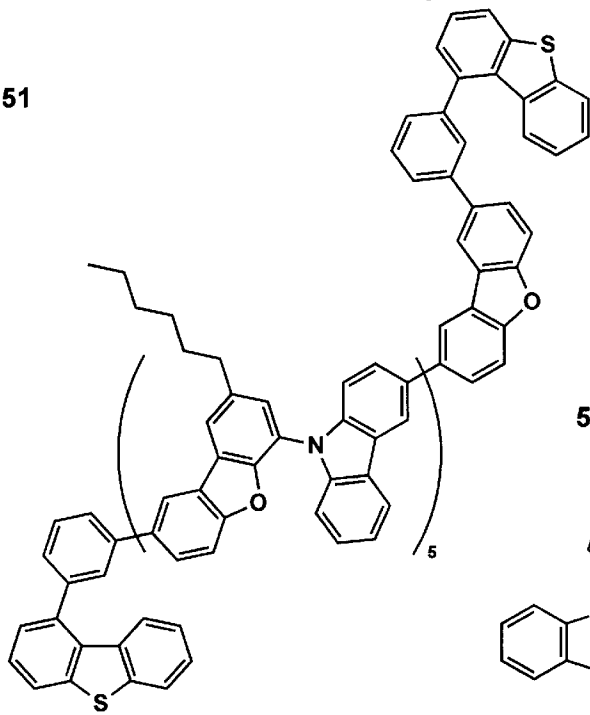
49



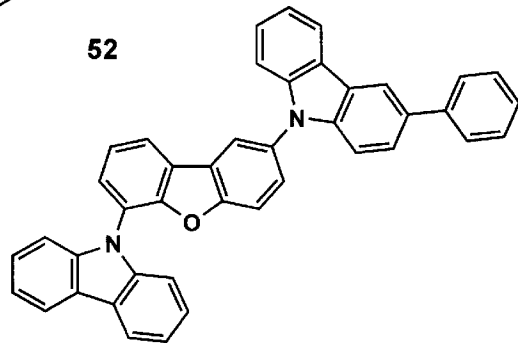
50



51



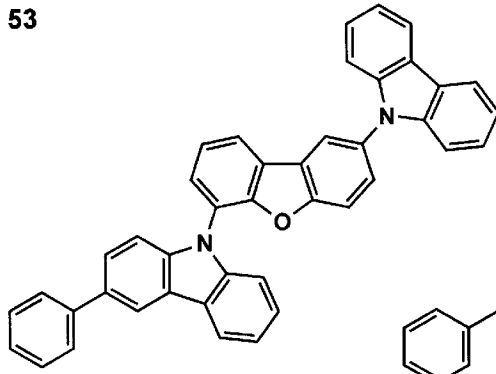
52



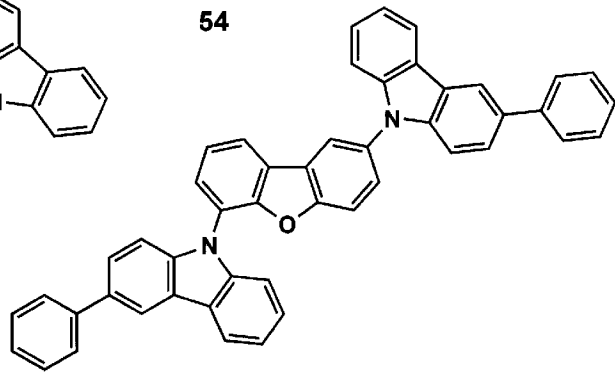
[0149]

[化64]

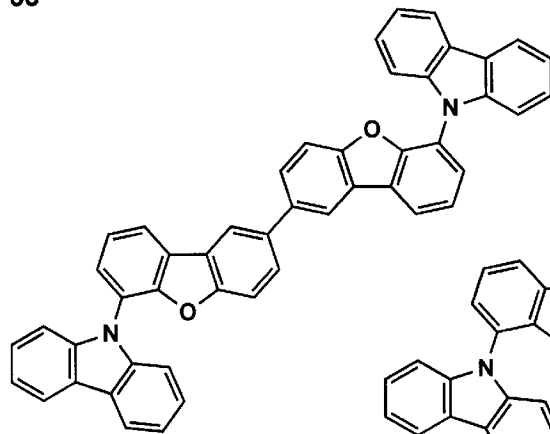
53



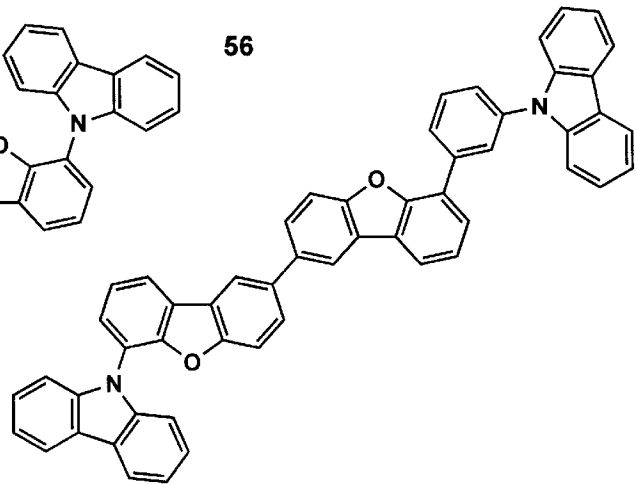
54



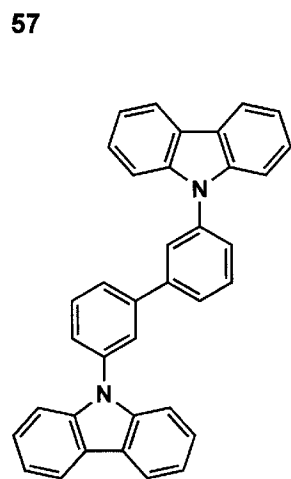
55



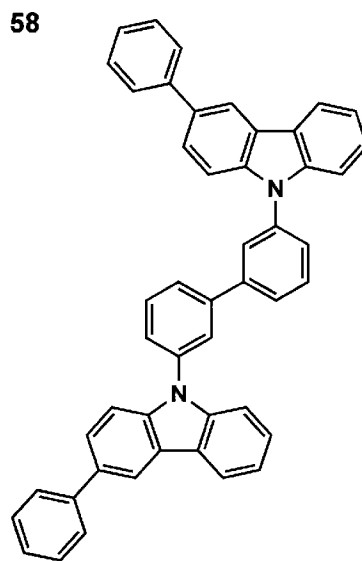
56



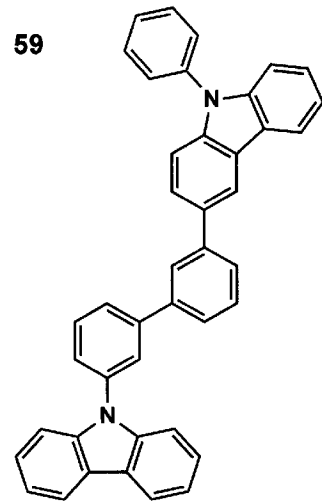
57



58



59

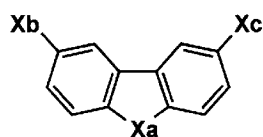


[0150] また、本発明の有機EL素子の発光層の発光ホストとして、下記一般式（ $B'$ ）で表される化合物も、特に好ましく用いられる。

[0151]

[化65]

一般式(B')



[0152] 一般式 (B') 中、X aはO又はSを表し、X b及びX cは、各々置換基又は上記した一般式 (C) で表される基を表す。

X b及びX cのうち少なくとも1つは上記した一般式 (C) で表される基を表し、該一般式 (C) で表される基のうち少なくとも1つはA rがカルバゾリル基を表す。

[0153] 上記一般式 (B') で表される化合物においては、好ましくは、一般式 (C) のA rが置換基を有していてもよいカルバゾリル基を表し、より好ましくは、一般式 (C) のA rが置換基を有していてもよく且つN位で一般式 (C) におけるL<sub>4</sub>と連結したカルバゾリル基を表す。

[0154] 本発明の有機EL素子の発光層のホスト化合物（発光ホストともいう）として好ましく用いられる一般式 (B') で表される化合物は、具体的には、先に発光ホストとして用いられる具体例として挙げた、OC-9、OC-11、OC-12、OC-14、OC-18、OC-29、OC-30、OC-31、OC-32が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

[0155] 《電子輸送層》

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

[0156] 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。

[0157] 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多環芳香族炭化水素、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、ヘキサアザトリフェニレン誘導体等が挙げられる。

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。

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。

[0158] 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。

[0159] 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。

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。

[0160] 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(Lan

gmuir 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。

[0161] 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。

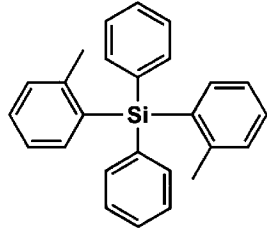
[0162] また、金属錯体やハロゲン化金属など金属化合物等のn型ドーパントをドーピングして用いてもよい。

[0163] 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用いら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。

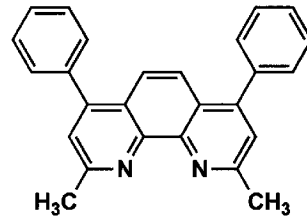
[0164]

[化66]

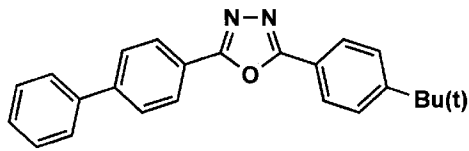
ET-1



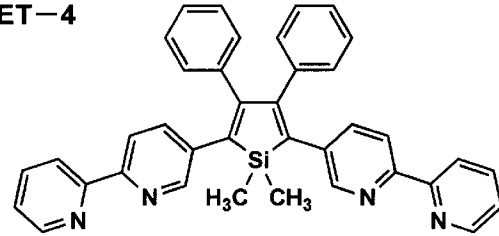
ET-2(BCP)



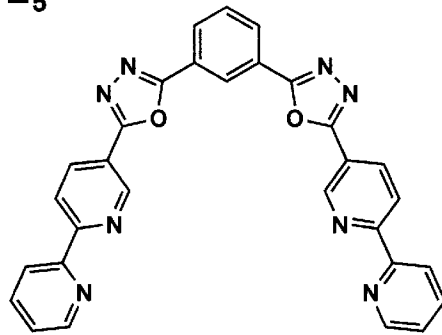
ET-3(PBD)



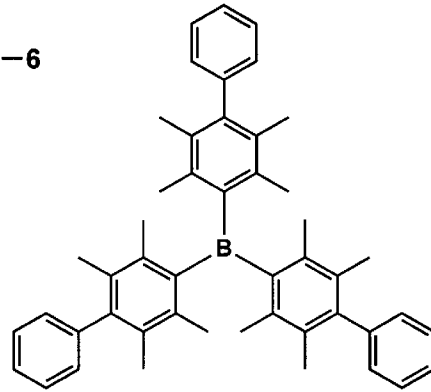
ET-4



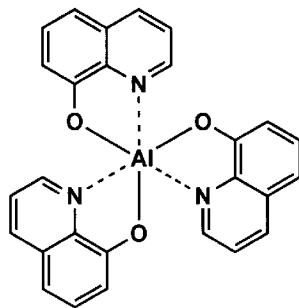
ET-5



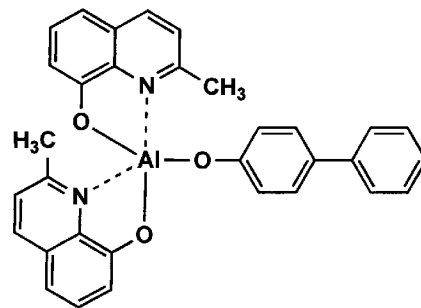
ET-6



ET-7(Alq3)



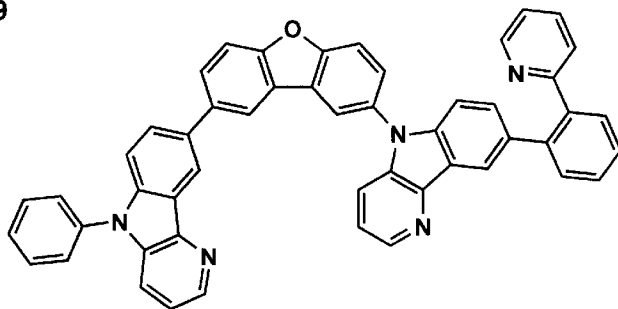
ET-8(BAlq)



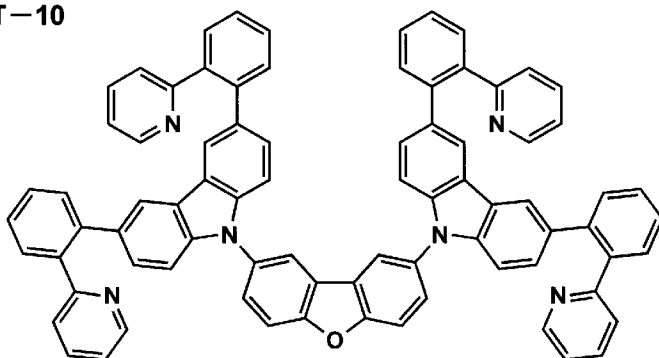
[0165]

[化67]

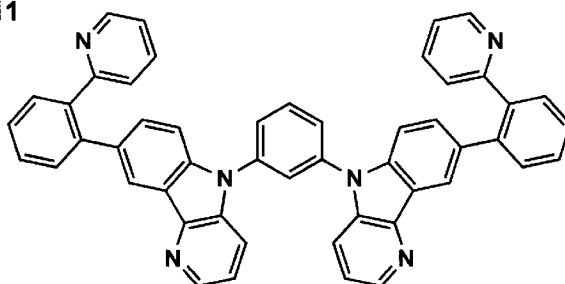
ET-9



ET-10



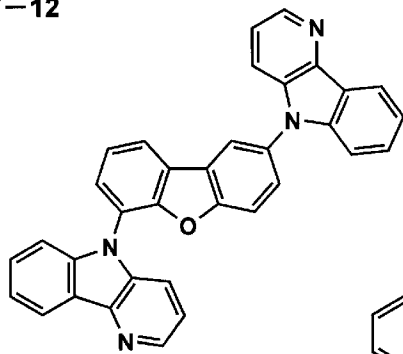
ET-11



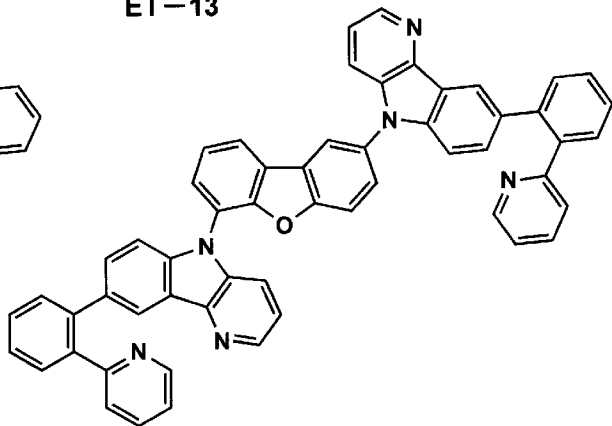
[0166]

[化68]

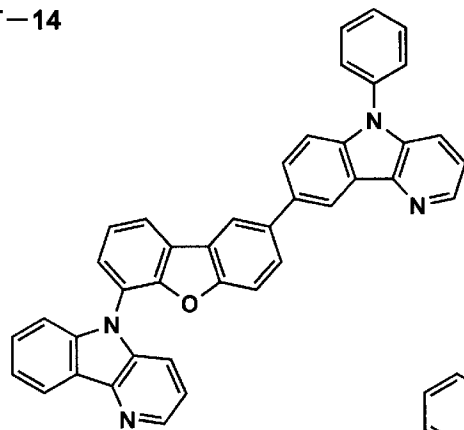
ET-12



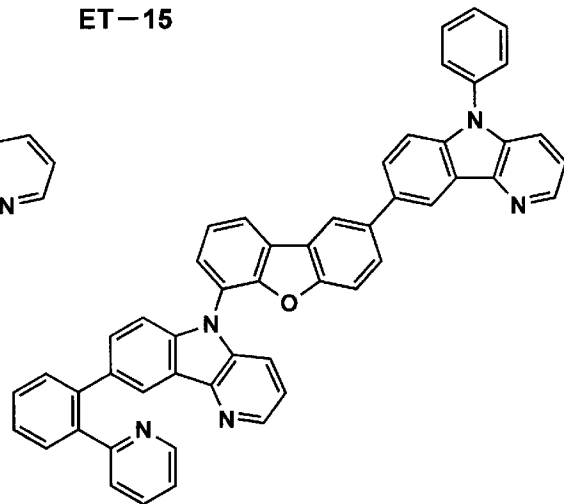
ET-13



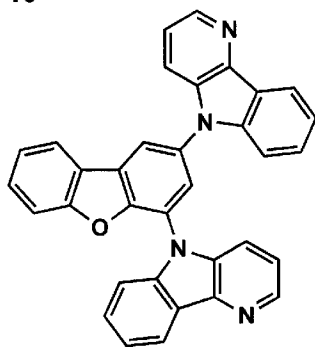
ET-14



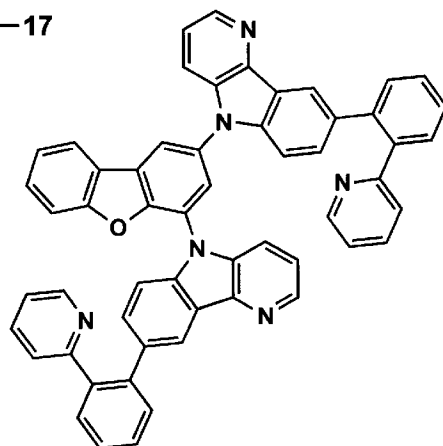
ET-15



ET-16



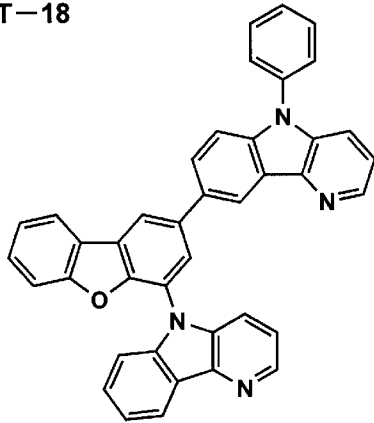
ET-17



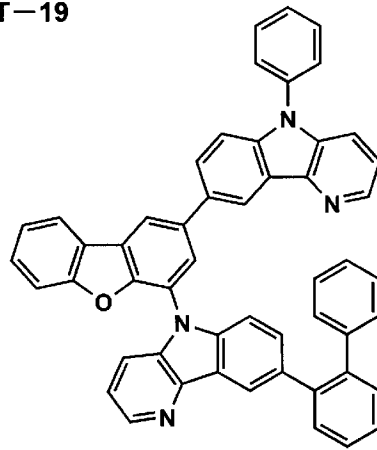
[0167]

[化69]

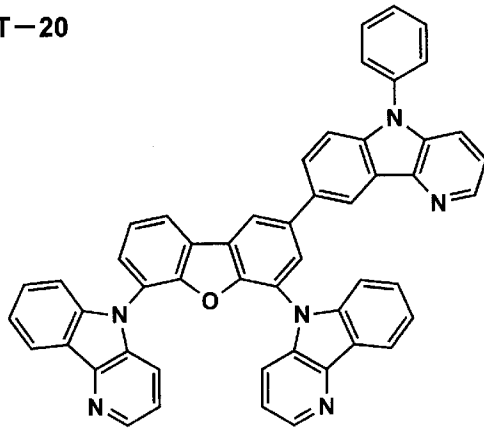
ET-18



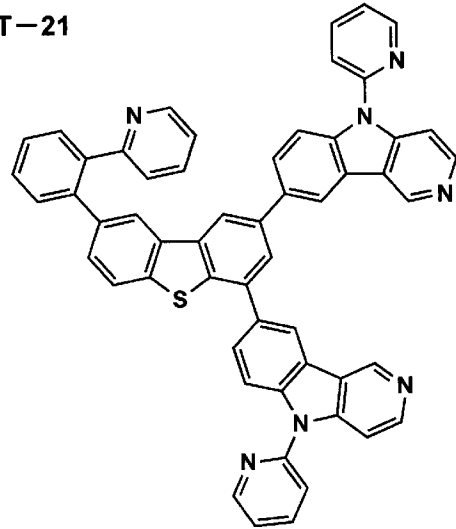
ET-19



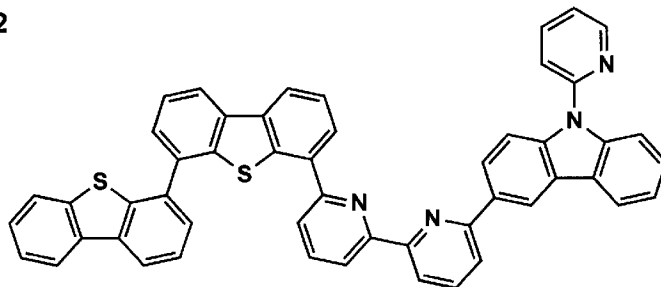
ET-20



ET-21



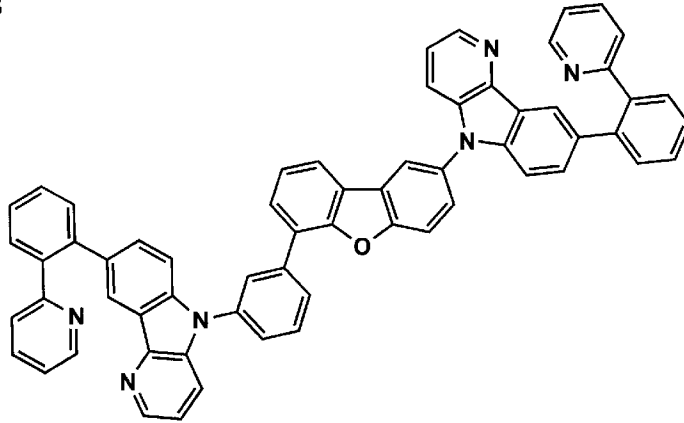
ET-22



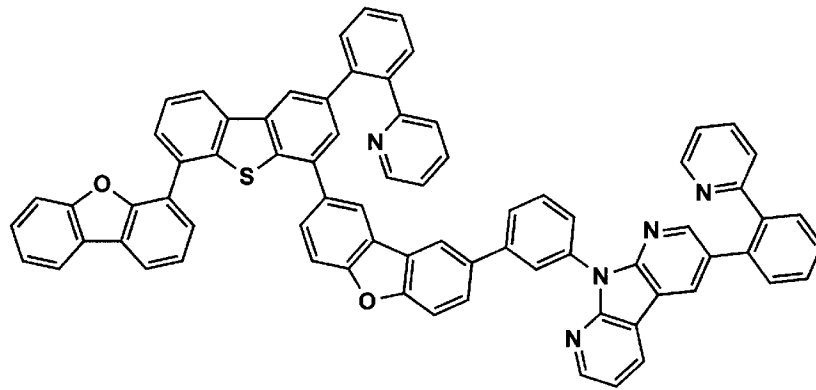
[0168]

[化70]

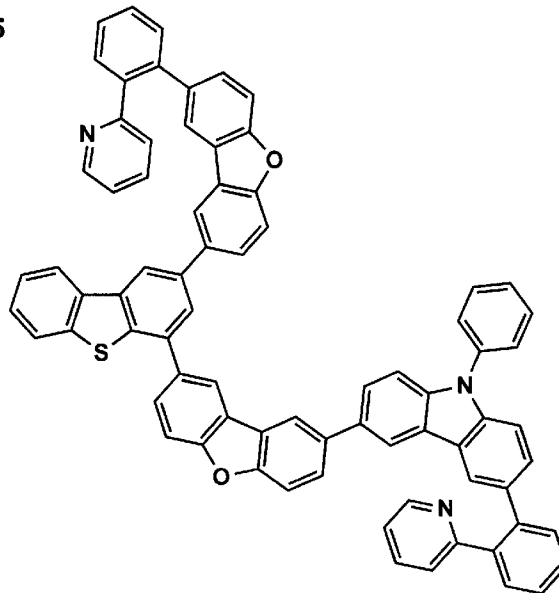
ET-23



ET-24



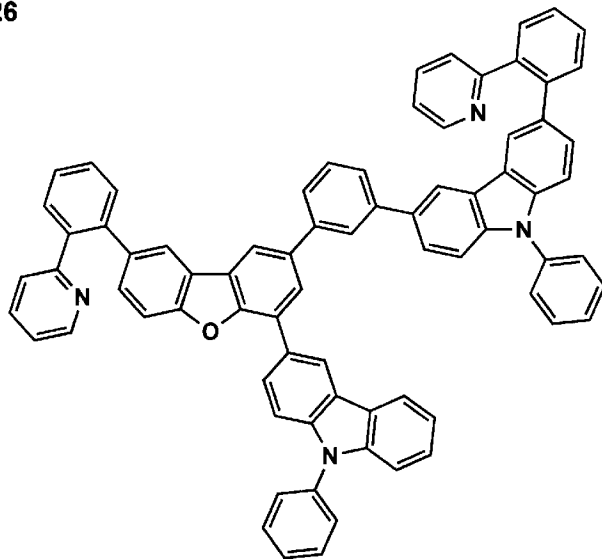
ET-25



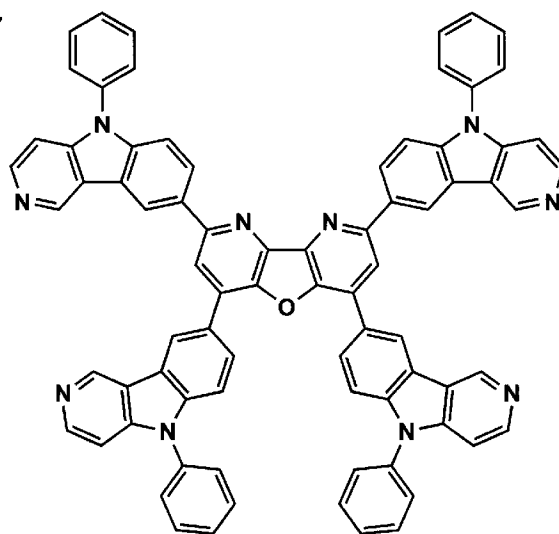
[0169]

[化71]

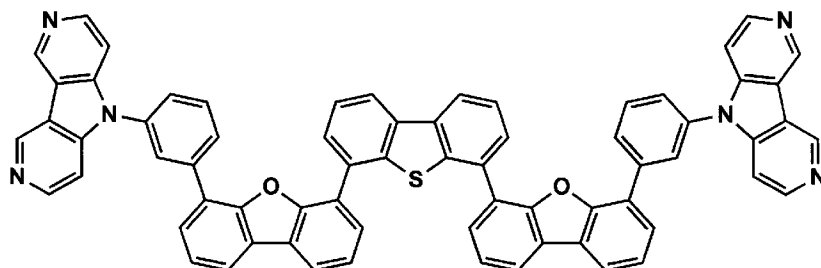
ET-26



ET-27



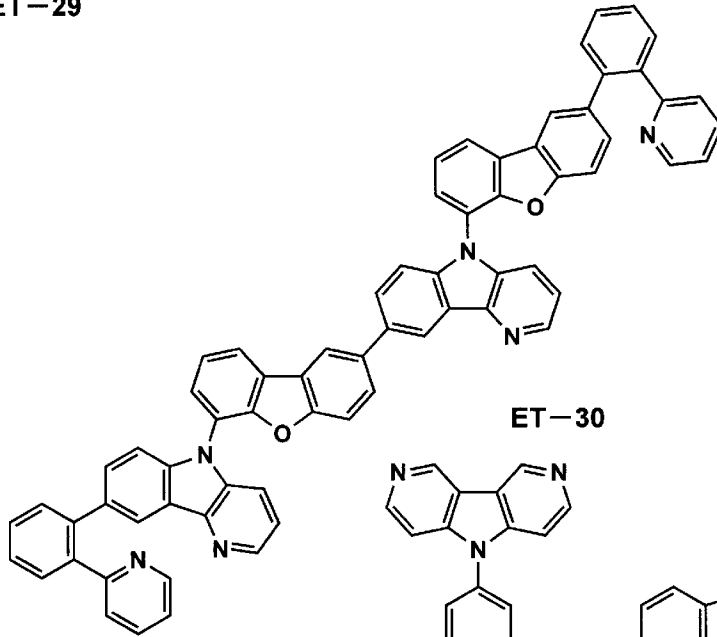
ET-28



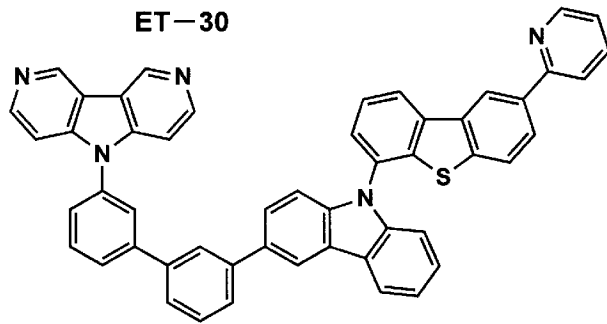
[0170]

[化72]

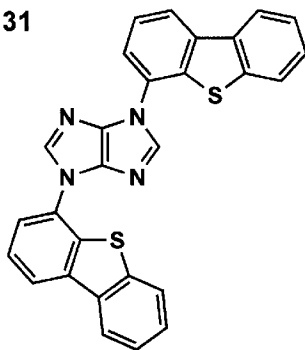
ET-29



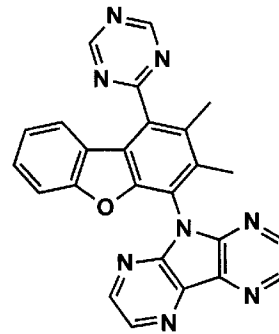
ET-30



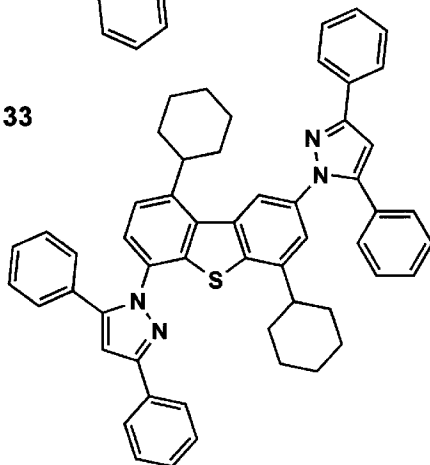
ET-31



ET-32



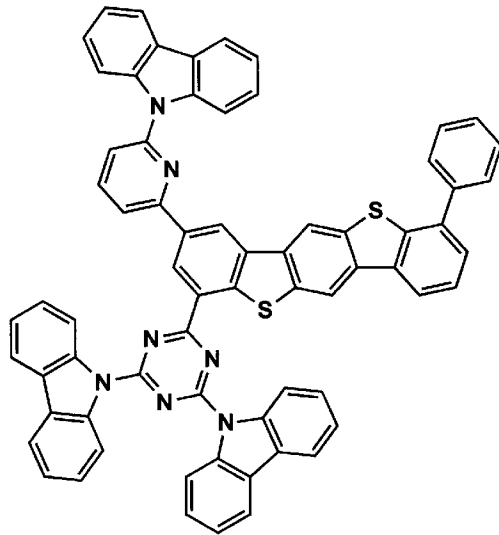
ET-33



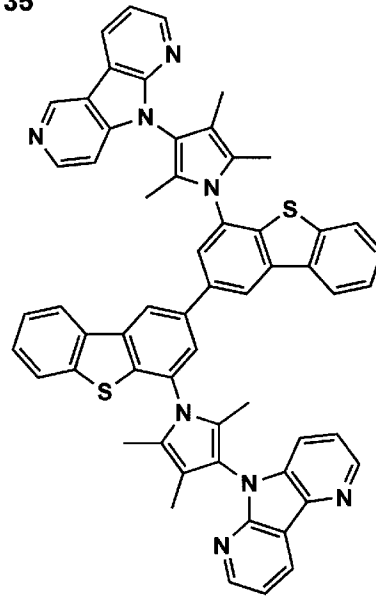
[0171]

[化73]

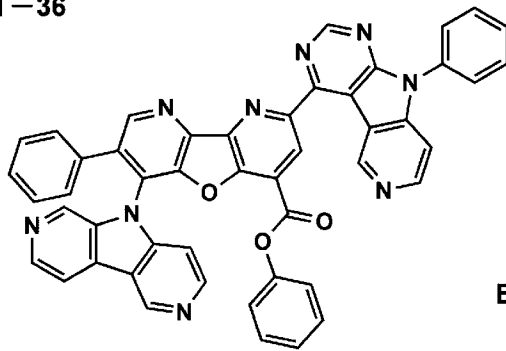
ET-34



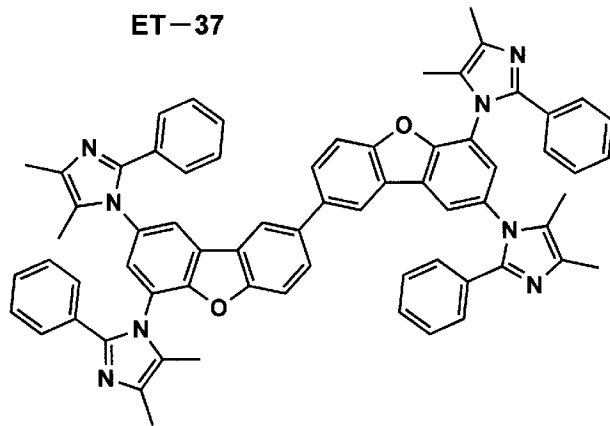
ET-35



ET-36



ET-37

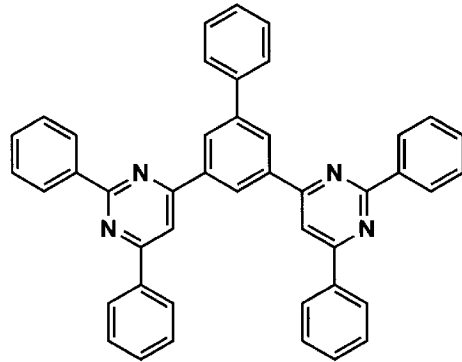


[0172]

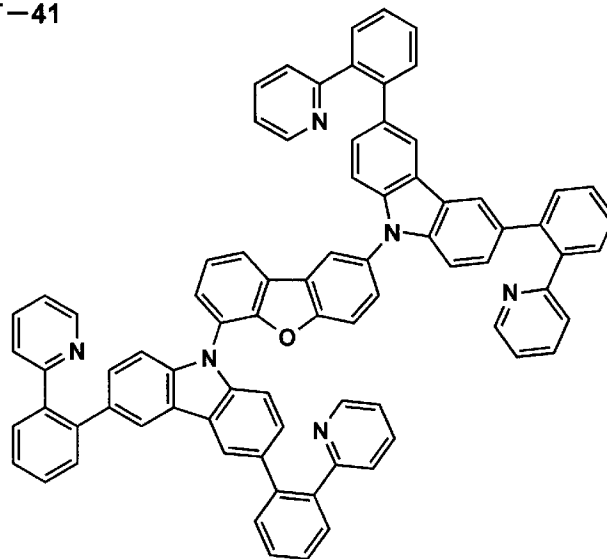


[化75]

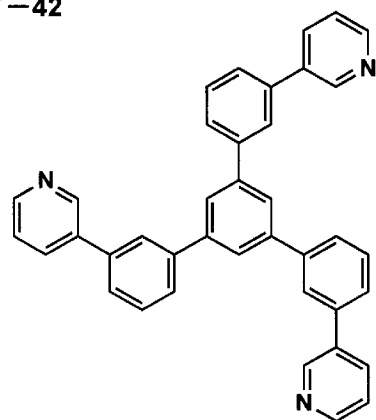
ET-40



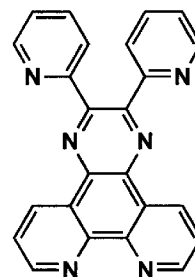
ET-41



ET-42



ET-43



[0174] 《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。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム ( $Al_2O_3$ ) 混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。

[0175] 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 $\Omega$ / $\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常10nm~5 $\mu$ m、好ましくは50nm~200nmの範囲で選ばれる。

[0176] なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

また、陰極に上記金属を1nm~20nmの膜厚で作製した後に、後述する陽極の説明で挙げる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。

[0177] 《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。

[0178] 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

頁～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。

[0179] 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、特表2003-519432や特開2006-135145等に記載されているようなヘキサアザトリフェニレン誘導体バッファ層、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、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム錯体等に代表されるオルトメタル化錯体層等が挙げられる。

[0180] 陰極バッファ層(電子注入層)は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウム、フッ化カリウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウム、フッ化セシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。上記バッファ層(注入層)はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるがその膜厚は0.1nm~5μmの範囲が好ましい。

[0181] 《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。

[0182] 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。

[0183] また、前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。

[0184] 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。

[0185] 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。

[0186] また、本発明においては、有機EL素子が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。

[0187] 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。

(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。

(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。

[0188] 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。

[0189] 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 nm～100 nmであり、更に好ましくは5 nm～30 nmである。

[0190] 《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。

[0191] 正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーラルカン誘導体、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、アリーラルアミン誘導体、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。

また、特表2003-519432号公報や特開2006-135145号公報等に記載されているようなアザトリフェニレン誘導体も同様に正孔輸送材料として用いることができる。

[0192] 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。

[0193] 芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル; N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル) - [1, 1' -ビフェニル] -4, 4' -ジアミン(TPD); 2, 2-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N' -テトラ-*p*-トリル-4, 4' -ジアミノビフェニル; 1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル) -4-フェニルシクロヘキサン; ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N' -ジフェニル-N, N' -ジ(4-メトキシフェニル) -4, 4' -ジアミノビフェニル; N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4' -ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(*p*-トリル)アミン; 4-(ジ-*p*-トリルアミノ) -4' - [4-(ジ-*p*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン; 3-メトキシ-4' -N, N-ジフェニルアミノスチルベン; 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。

[0194] 更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

また、*p*型-Si、*p*型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸

送材料として使用することができる。

[0195] 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。

[0196] 正孔輸送層は上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。

正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は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1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

[0197] また、不純物をドーピングしたp性の高い正孔輸送層を用いることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報の各公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004) 等に記載されたものが挙げられる。

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

[0198] 《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(4eV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)、SnO<sub>2</sub>、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。

[0199] また、IDIXO(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZnO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は

(100 μm以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。

[0200] 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/□以下が好ましい。更に膜厚は材料にもよるが、通常10nm~1000nm、好ましくは10nm~2000nmの範囲で選ばれる。

[0201] 《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。

[0202] 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、アート

ン（商品名J S R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。

[0203] 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、J I S K 7 1 2 9 - 1 9 9 2 に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度（ $90 \pm 2$ ）%RH）が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のバリア性フィルムであることが好ましく、更には、J I S K 7 1 2 6 - 1 9 8 7 に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 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。

[0204] 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。

[0205] 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。

[0206] 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。

[0207] 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、5%以上であるとより好ましい。

[0208] ここで、外部取り出し量子効率(%) = 有機EL素子外部に発光した光子数 / 有機EL素子に流した電子数  $\times 100$  である。

[0209] 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 $\lambda_{max}$ は480nm以下が好ましい。

[0210] 《有機EL素子の作製方法》

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

[0211] まず、適当な基体上に所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を1 $\mu$ 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。

[0212] 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。

[0213] 薄膜の形成方法としては、例えば、真空蒸着法、湿式法（ウェットプロセスともいう）等により成膜して形成することができる。

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、層ごとに異なる成膜法を適用してもよい。

[0214] 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。

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。

[0215] これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を1  $\mu\text{m}$ 以下、好ましくは50~200 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。

[0216] 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。

[0217] 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成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。

[0218] 《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。

[0219] 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。

[0220] 具体的には、ガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。

また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等から形成されたもの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。

[0221] 本発明においては、素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム、金属フィルムを好ましく使用することができる。

更には、ポリマーフィルムは、JIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度 ( $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 ( $90 \pm 2$ ) %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。

[0222] 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。

[0223] 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。

[0224] 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 $80^\circ\text{C}$ 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。

[0225] 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。

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。

[0226] 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。

[0227] 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。

[0228] 《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。

[0229] 《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 $\theta$ 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。

[0230] 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。

[0231] 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。

[0232] 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。

[0233] 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。

[0234] 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。

[0235] 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。

[0236] 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。

[0237] 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。

[0238] 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。

[0239] 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。

[0240] 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。

[0241] 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、二次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

## [0242] 《集光シート》

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

[0243] マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一辺が $30\mu\text{m}$ でその頂角が $90$ 度となるような四角錐を2次元に配列する。一辺は $10\mu\text{m}$ ~ $100\mu\text{m}$ が好ましい。これより小さくなると回折の効果が発生して色付く、大きすぎると厚みが厚くなり好ましくない。

[0244] 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。

プリズムシートの形状としては、例えば、基材に頂角 $90$ 度、ピッチ $50\mu\text{m}$ の $\Delta$ 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。

[0245] 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。

## [0246] 《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。

[0247] 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。

[0248] 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。

[0249] 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、 $1000\text{ cd/m}^2$ 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。

[0250] 《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。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。

[0251] 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。

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。

[0252] 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。

[0253] 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。

[0254] このようにして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 $2\text{ V}\sim 40\text{ V}$ 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。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

[0255] 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。

[0256] 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。

[0257] 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。

[0258] 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。

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。

[0259] 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。

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。

[0260] 図2は表示部Aの模式図である。

表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と複数

の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。

図2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。

[0261] 配線部の走査線5及び複数のデータ線6はそれぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している（詳細は図示していない）。

画素3は走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。

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。

[0262] 次に、画素の発光プロセスを説明する。図3は画素の模式図である。

画素は有機EL素子10、スイッチングトランジスター11、駆動トランジスター12、コンデンサー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。

[0263] 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ー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ー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ー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ー13と駆動トランジスター12のゲートに伝達される。

[0264] 画像データ信号の伝達により、コンデンサー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、駆動トランジスター12の駆動がオンする。駆動トランジスター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。

[0265] 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

グトランジスター 11 の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスター 11 の駆動がオフしてもコンデンサー 13 は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスター 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ー 12 が駆動して有機 EL 素子 10 が発光する。

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ー 11 と駆動トランジスター 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。

[0266] 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、コンデンサー 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。

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

[0267] 図 4 はパッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。図 4 において、複数の走査線 5 と複数の画像データ線 6 が画素 3 を挟んで対向して格子状に設けられている。

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

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。

[0268] 《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。

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。

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。

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

[0269] 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、赤色、緑色、青色の3原色の3つの発光極大波長を含有させたものでもよいし、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。

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。

[0270] 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

マスク等のパターニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピニングコート法、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。

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。

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。

[0271] 《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。

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 $\mu$ 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。

[0272] 図5は、照明装置の概略図を示し、本発明の有機EL素子101はガラスカバー102で覆われている（なお、ガラスカバーでの封止作業は、有機EL素子101を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度99.999%以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った。）。

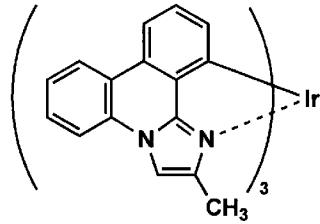
[0273] 図6は、照明装置の断面図を示し、図6において、105は陰極、106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板を示す。なお、ガラスカバー102内には窒素ガス108が充填され、捕水剤109が設けられている。

[0274] 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。

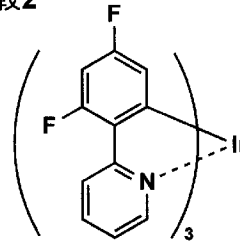
また、以下に説明する実施例で用いられる化合物の構造を以下に示す。

[0275] [化76]

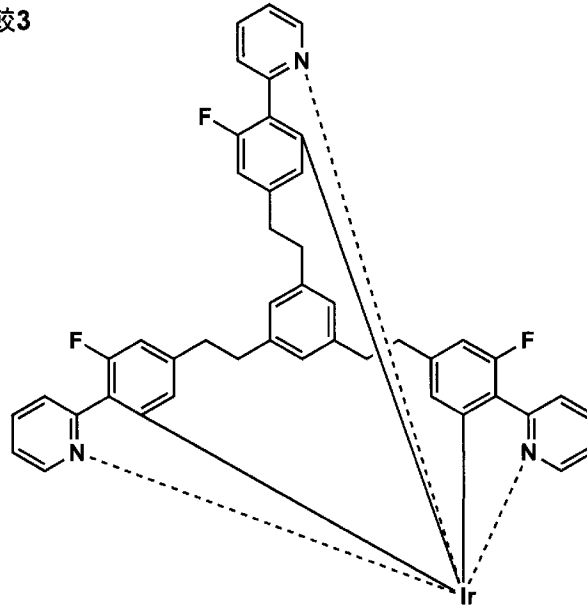
比較1



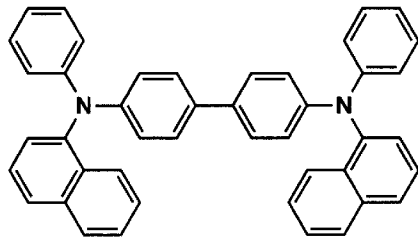
比較2



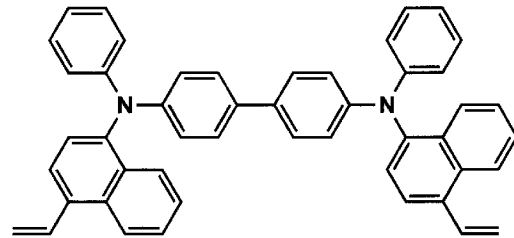
比較3



$\alpha$ -NPD



正孔輸送材料7



### 実施例 1

[0276] (励起子耐性試験)

《有機EL素子1-1の作製》

100mm×100mm×1.1mmの石英基板を市販の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ポートにホスト化合物としてOC-11とドーパント化合物として比較1を入れた後、当該加熱ポートに

通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.1nm/秒、0.006nm/秒で石英基板上に共蒸着して膜厚80nmの層を設けた。

[0277] 《有機EL素子1-2～1-8の作製》

有機EL素子1-1の作製において、発光層におけるホスト化合物及びドーパント化合物を表1に記載の化合物に変更した。

それ以外は同様にして、有機EL素子1-2～1-8を各々作製した。

[0278] 《有機EL素子1-1～1-8の評価》

得られた有機EL素子1-1～1-8を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300 $\mu$ 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、これを上記有機層に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して硬化させて封止し、図5及び図6に示すような照明装置を作製して評価した。

このようにして作製した各サンプルについて以下の評価を行った。評価結果を表1に示す。

[0279] [発光極大波長]

測定するドーパント化合物を、よく脱酸素された2-メチルテトラヒドロフラン溶媒に溶解させ、リン光測定用セルに入れた後、励起光を照射して発光スペクトルを測定した。得られた発光スペクトルの中で、最も短波側に現れる極大波長を発光極大波長とした。

[0280] [輝度残存率]

UV-LED（5W/cm<sup>2</sup>）光源とサンプルの距離を10mmとし、サンプルに対し光を20分照射したときの輝度残存率を測定した。

有機EL素子1-1を100とする相対値で表した。

輝度残存率 = (初期輝度 - 20分後輝度) / 初期輝度

[0281]

[表1]

素子番号	ドーパント化合物	ホスト化合物	発光極大波長 (nm)	輝度残存率	備考
1-1	比較1	1	465	100	比較例
1-2	比較2	1	472	130	比較例
1-3	比較3	1	472	138	比較例
1-4	化合物例41	1	465	175	本発明
1-5	化合物例2	1	455	187	本発明
1-6	化合物例21	1	466	160	本発明
1-7	化合物例24	1	463	170	本発明
1-8	化合物例33	1	464	164	本発明

## [0282] [まとめ]

光照射による励起子耐久試験を行い、表1のように、本発明の化合物は、比較化合物に対して、輝度残存率が高いことから、励起子耐久性に優れていることがわかる。

## 実施例 2

## [0283] 《有機EL素子2-1の作製》

(ホールオンリー素子の作製)

100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上に、陽極として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。

[0284] この透明支持基板上に、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)ーポリスチレンスルホネート(PEDOT/PSS、H.C. スタルク社製、CLEVIO P V P A I 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の第1正孔輸送層を設けた。

[0285] 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として $\alpha$ -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OC-11を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにドーパント化合物として比較1を100mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

[0286] 次いで真空槽を $4 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、 $\alpha$ -NPDの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/秒で第1正孔輸送層上に蒸着し、膜厚20 nmの第2正孔輸送層を設けた。

[0287] 更に、ホスト化合物としてOC-11とドーパント化合物として比較1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0.1 nm/秒、0.006 nm/秒で前記第2正孔輸送層上に共蒸着して膜厚80 nmの発光層を設けた。

[0288]  $\alpha$ -NPDの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/秒で発光層上に蒸着し、膜厚20 nmの電子阻止層を設けた。

なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

[0289] 引き続き、アルミニウムを蒸着して膜厚110 nmの陰極を形成し、有機EL素子2-1を作製した。

[0290] 《有機EL素子2-2~2-10の作製》

有機EL素子2-1の作製において、発光層におけるホスト化合物及びドーパント化合物を表2に記載の化合物に変更した。

それ以外は同様にして、有機EL素子2-2~2-10を各々作製した。

[0291] 《有機EL素子2-1~2-10の評価》

得られた有機EL素子2-1~2-10を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300  $\mu$ 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、これを上記陰極上に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して硬化させて封止し、図5及び図6に示すような照明装置を作製して評価した。

このようにして作製した各サンプルについて下記の評価を行った。評価結

果を表 2 に示す。

[0292] [駆動時電圧上昇]

有機 EL 素子を室温（約 23～25℃）、2.5 mA/cm<sup>2</sup> の定電流条件下、100 時間通電させ、駆動した時の電圧を各々測定し、測定結果を下記に示した計算式により計算し、得られた結果を表 2 に示した。

有機 EL 素子 2-1 を 100 とする相対値で表した。

駆動時の電圧上昇（相対値）＝輝度半減時の駆動電圧－初期駆動電圧

なお、値が小さいほうが比較に対して駆動時の電圧上昇が小さいことを示す。

[0293] [表2]

素子番号	ドーパント化合物	ホスト化合物	電圧上昇	備考
2-1	比較 1	OC-11	100	比較例
2-2	比較 2	OC-11	73	比較例
2-3	比較 3	OC-11	65	比較例
2-4	化合物例 1	OC-11	33	本発明
2-5	化合物例 8	52	38	本発明
2-6	化合物例 10	OC-29	40	本発明
2-7	化合物例 13	OC-30	39	本発明
2-8	化合物例 22	26	42	本発明
2-9	化合物例 28	30	39	本発明
2-10	化合物例 34	OC-29	38	本発明

[0294] [まとめ]

ホールオンリー素子駆動による正孔通電時の耐久試験を行い、表 2 のように、本発明の化合物は、比較化合物に対して、駆動時の電圧上昇が少なく、正孔通電時の安定性が向上している事がわかる。

### 実施例 3

[0295] 《有機 EL 素子 3-1 の作製》

（エレクトロンオンリー素子の作製）

100 mm×100 mm×1.1 mm のガラス基板の上に、陽極として ITO（インジウムチンオキシド）を 100 nm 製膜した基板（NH テクノグラフィクス社製 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。

[0296] 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ボートにCaを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにホスト化合物としてOC-11を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにドーパント化合物として比較1を100mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

[0297] 次に真空槽を $4 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、Ca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/秒で透明支持基板上に蒸着し、膜厚10nmの正孔阻止層を設けた。

[0298] 更に、ホスト化合物としてOC-11とドーパント化合物として比較1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.1nm/秒、0.006nm/秒で前記正孔阻止層上に共蒸着して膜厚80nmの発光層を設けた。

[0299] Ca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/秒で発光層上に蒸着した。

なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

[0300] 引き続き、アルミニウムを蒸着して膜厚110nmの陰極を形成し、有機EL素子2-1を作製した。

[0301] 《有機EL素子3-2~3-10の作製》

有機EL素子3-1の作製において、発光層におけるホスト化合物及びドーパント化合物を表3に記載の化合物に変更した。

それ以外は同様にして、有機EL素子3-2~3-10を各々作製した。

[0302] 《有機EL素子3-1~3-10の評価》

得られた有機EL素子3-1~3-10を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300 $\mu$ 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

上記陰極上に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して硬化させて封止し、図5及び図6に示すような照明装置を作製して評価した。

このようにして作製した各サンプルについて下記の評価を行った。評価結果を表3に示す。

[0303] [駆動時電圧上昇]

有機EL素子を室温（約23～25℃）、2.5mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下、100時間通電させ、駆動した時の電圧を各々測定し、測定結果を下記に示した計算式により計算し、得られた結果を表3に示した。

有機EL素子3-1を100とする相対値で表した。

駆動時の電圧上昇（相対値）＝輝度半減時の駆動電圧－初期駆動電圧

なお、値が小さいほうが比較に対して駆動時の電圧上昇が小さいことを示す。

[0304] [表3]

素子番号	ドーパント化合物	ホスト化合物	電圧上昇	備考
3-1	比較1	OC-11	100	比較例
3-2	比較2	OC-11	81	比較例
3-3	比較3	OC-11	77	比較例
3-4	化合物例1	OC-30	30	本発明
3-5	化合物例2	52	29	本発明
3-6	化合物例7	OC-29	45	本発明
3-7	化合物例21	OC-11	40	本発明
3-8	化合物例27	28	38	本発明
3-9	化合物例34	30	41	本発明
3-10	化合物例40	OC-29	39	本発明

[0305] [まとめ]

エレクトロンオンリー素子駆動による正孔通電時の耐久試験を行い、表3のように、本発明の化合物は、比較化合物に対して、駆動時の電圧上昇が少なく、電子通電時の安定性が向上している事がわかる。

#### 実施例 4

[0306] 《有機EL素子4-1の作製》

100mm×100mm×1.1mmのガラス基板の上に、陽極として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。

- [0307] 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、H.C. スタルク社製、CLEVIO P VP AI 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の第1正孔輸送層を設けた。
- [0308] 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ボートに正孔輸送材料として $\alpha$ -NPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにホスト化合物としてOC-30を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに電子輸送材料としてET-8を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにドーパント化合物として比較1を100mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。
- [0309] 次いで真空槽を $4 \times 10^{-4}$ Paまで減圧した後、 $\alpha$ -NPD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/秒で第1正孔輸送層上に蒸着し、膜厚20nmの第2正孔輸送層を設けた。
- [0310] 更に、ホスト化合物としてOC-30とドーパント化合物として比較1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.1nm/秒、0.006nm/秒で前記第2正孔輸送層上に共蒸着して膜厚40nmの発光層を設けた。
- [0311] 更にET-8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/秒で前記発光層上に蒸着して膜厚30nmの電子輸送層を設けた。  
なお、蒸着時の基板温度は室温であった。
- [0312] 引き続き、フッ化リチウムを蒸着して膜厚0.5nmの陰極バッファ層

を形成し、更にアルミニウムを蒸着して膜厚110nmの陰極を形成し、有機EL素子4-1を作製した。

[0313] 《有機EL素子4-2～4-10の作製》

有機EL素子4-1の作製において、発光層におけるホスト化合物及びドープメント化合物を表4に記載の化合物に変更した。

それ以外は同様にして、有機EL素子4-2～4-10を各々作製した。

[0314] 《有機EL素子4-1～4-10の評価》

得られた有機EL素子4-1～4-10を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300 $\mu$ 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、これを上記陰極上に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して硬化させて封止し、図5及び図6に示すような照明装置を作製して評価した。

このようにして作製した各サンプルについて下記の評価を行った。評価結果を表4に示す。

[0315] (1) 外部取り出し量子効率（単に、効率ともいう）

有機EL素子を室温（約23～25 $^{\circ}$ C）、2.5mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下による点灯を行い、点灯開始直後の発光輝度（L）[cd/m<sup>2</sup>]を測定することにより、外部取り出し量子効率（ $\eta$ ）を算出した。

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）を用いて行い、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。

[0316] (2) 半減寿命

下記に示す測定法に従って、半減寿命の評価を行った。

各有機EL素子を初期輝度1000cd/m<sup>2</sup>を与える電流で定電流駆動して、初期輝度の1/2（500cd/m<sup>2</sup>）になる時間を求め、これを半減寿命の尺度とした。

なお、半減寿命は有機EL素子4-1を100とする相対値で表した。

[0317] (3) 駆動時の電圧上昇

有機EL素子を室温（約23℃～25℃）、2.5 mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下により駆動した時の電圧を各々測定し、測定結果を下記に示した計算式により計算し、得られた結果を表4に示した。

有機EL素子4-1を100とする相対値で表した。

駆動時の電圧上昇（相対値）＝輝度半減時の駆動電圧－初期駆動電圧

なお、値が小さいほうが比較に対して駆動時の電圧上昇が小さいことを示す。

[0318] (4) 熱安定性評価

有機EL素子4-1～4-10のそれぞれについて、同じ蒸着ボート（モリブデン製抵抗加熱ボート）を用い同じ構成の素子を5素子ずつ作製した（例えば、有機EL素子4-1, 4-1b, 4-1c, 4-1d, 4-1e）。

それぞれ1回目に作製した素子（例えば、有機EL素子4-1）、3回目に作製した素子（例えば、有機EL素子4-1c）、5回目に作製した素子（例えば、有機EL素子4-1e）のそれぞれについて上記と同様の方法で半減寿命を測定した。各素子の半減寿命は、1回目に作製した有機EL素子4-1を100とする相対値で表した。

[0319] [表4]

素子番号	ドーパント化合物	発光極大波長 (nm)	外部取り出し量子効率	半減寿命	駆動時の電圧上昇	熱安定性評価		備考
						半減寿命 (3回目)	半減寿命 (5回目)	
4-1	比較1	465	100	100	100	85	70	比較例
4-2	比較2	472	130	55	130	130	129	比較例
4-3	比較3	472	129	70	110	130	130	比較例
4-4	化合物例2	455	140	135	78	140	141	本発明
4-5	化合物例21	466	145	150	80	144	144	本発明
4-6	化合物例24	463	149	144	82	148	150	本発明
4-7	化合物例33	464	151	146	79	150	151	本発明
4-8	化合物例41	465	144	139	81	143	145	本発明

[0320] (5) まとめ

表4から、本発明の有機EL素子4-4~4-8は、比較例の有機EL素子1-1~1-3に対して、発光効率及び寿命が良好であり、素子としての特性が向上していることが分かる。更には、比較例の有機EL素子4-1は1回目に作製された素子、3回目に作製された素子、5回目に作製された素子、と半減寿命が徐々に低下していくのに対して、本発明の有機EL素子4-4~4-8は1回目に作製された素子、3回目に作製された素子、5回目素子に作製された素子、と半減寿命がほとんど低下しておらず、本発明の有機EL素子に用いられているドーパント化合物は熱安定性に優れていることが分かる。

## 実施例 5

### [0321] 《白色発光有機EL素子5-1の作製》

100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上に、陽極として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。

[0322] 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として $\alpha$ -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OC-11を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに電子輸送材料としてET-11を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにドーパント化合物として比較1を100mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにドーパント化合物としてD-10を100mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

[0323] 次いで真空槽を $4 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、 $\alpha$ -NPDの入った前記加熱ポートをそれぞれ別々に通電して、蒸着速度0.1nm/秒で透明支持基板に蒸着し膜厚20nmの正孔輸送層を設けた。

[0324] 更に、ホスト化合物としてOC-11、ドーパント化合物として比較1及

びD-10の入った前記加熱ポートに通電して、OC-11、比較1、D-10の蒸着速度が100:5:0.6になるように調節し、膜厚30nmの厚さになるように蒸着して発光層を設けた。

[0325] 更にET-11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/秒で前記発光層上に蒸着して膜厚30nmの電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

[0326] 引き続き、フッ化リチウムを蒸着して膜厚0.5nmの陰極バッファ層を形成し、更にアルミニウムを蒸着して膜厚110nmの陰極を形成して、有機EL素子5-1を作製した。

[0327] 作製した有機EL素子5-1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出来ることが分かった。なお、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分かった。

[0328] 《有機EL素子5-2~5-10の作製》

有機EL素子5-1の作製において、発光層におけるホスト化合物及びドープメント化合物を表5に示す化合物に変更した。

それ以外は同様にして、有機EL素子5-2~5-10を各々作製した。

[0329] 《有機EL素子5-1~5-10の評価》

得られた有機EL素子5-1~5-10を評価するに際しては、当該有機EL素子を実施例2の有機EL素子2-2~2-10と同様に封止し、図5及び図6に示すような照明装置を作製して評価した。

このようにして作製した各サンプルに対し、実施例4と同様に、外部取り出し量子効率、半減寿命及び駆動時の電圧上昇について評価を行った。評価結果を表5に示す。なお、表5における外部取り出し量子効率、発光寿命及び駆動時の電圧上昇の測定結果は、有機EL素子5-1の測定値を100とする相対値で表した。

[0330]

[表5]

素子番号	ドーパント化合物	ホスト化合物	外部取り出し量子効率	半減寿命	駆動時の電圧上昇	備考
5-1	比較1	OC-11	100	100	100	比較例
5-2	比較2	OC-11	120	30	120	比較例
5-3	比較3	OC-11	118	31	110	比較例
5-4	化合物例1	OC-11	130	150	65	本発明
5-5	化合物例2	52	131	145	70	本発明
5-6	化合物例7	OC-29	126	140	77	本発明
5-7	化合物例20	OC-30	120	139	78	本発明
5-8	化合物例27	26	119	137	81	本発明
5-9	化合物例30	30	123	143	82	本発明
5-10	化合物例35	OC-29	125	145	85	本発明

[0331] 表5から、本発明の有機EL素子5-4～5-10は、比較例の有機EL素子5-1～5-3に対して、高い発光効率及び長寿命を示し、駆動時の電圧上昇も抑える等、素子としての特性が向上していることが分かる。

## 実施例 6

[0332] 《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。

ガラス基板201上に、陽極として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のピッチでパターンニングを行った後（図7（a）参照）、このガラス基板201上であってITO透明電極202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で形成した（図7（b）参照）。

[0333] ITO電極202上であって隔壁203同士の間の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200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を設けた（図7（c）参照）。

[0334] この正孔注入層204上に、各々下記組成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、各色の発光層205B、205G、

205Rを設けた（図7（d）参照）。

[0335] 次に、各発光層205B、205G、205Rを覆うように電子輸送材料（ET-10）を蒸着して膜厚20nmの電子輸送層（図示略）を設け、更にフッ化リチウムを蒸着して膜厚0.6nmの陰極バッファ層（図示略）を設け、Alを蒸着して膜厚130nmの陰極106を設けて有機EL素子を作製した（図7（e）参照）。

[0336] 作製した有機EL素子はそれぞれ電極に電圧を印加することにより青色、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。

[0337] （正孔注入層組成物）

正孔輸送材料7 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）

ホスト材料1 0.7質量部

化合物例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

（緑色発光層組成物）

ホスト材料1 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）

ホスト材料1 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

## 産業上の利用可能性

[0338] 以上のように、本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子材料の熱安定性、励起子の安定性、キャリア通電時の安定性を向上させ、且つ発光スペクトルの波形を改良することで、発光効率が高く長寿命な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に適している。

## 符号の説明

- [0339]
- 1 ディ스플레이
  - 3 画素
  - 5 走査線
  - 6 データ線
  - 7 電源ライン
  - 10 有機EL素子
  - 11 スイッチングトランジスター
  - 12 駆動トランジスター
  - 13 コンデンサー
  - 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

206 陰極

A 表示部

B 制御部

## 請求の範囲

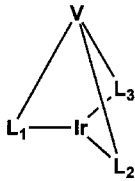
[請求項1]

陽極と陰極との間に、発光層を含む少なくとも1層の有機層が挟持された有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記発光層に、下記一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物が含有され、当該イリジウム錯体化合物の発光極大波長が470nm以下であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化1]

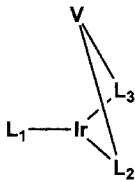
一般式(1)



[一般式(1)中、Vは三価の連結基を表し、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>と共有結合で連結している。L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式(5)で表される。]

[化2]

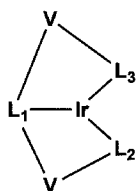
一般式(2)



[一般式(2)中、Vは二価の連結基を表し、L<sub>2</sub>及びL<sub>3</sub>と共有結合で連結している。L<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>は、各々下記一般式(5)で表される。]

[化3]

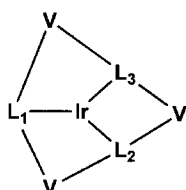
一般式(3)



[一般式(3)中、Vはそれぞれ二価の連結基を表し、 $L_1$ 、 $L_2$ 及び $L_3$ とそれぞれ共有結合で連結している。 $L_1 \sim L_3$ は、各々下記一般式(5)で表される。]

[化4]

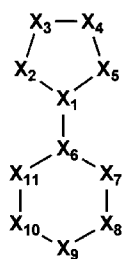
一般式(4)



[一般式(4)中、Vはそれぞれ二価の連結基を表し、 $L_1$ 、 $L_2$ 及び $L_3$ とそれぞれ共有結合で連結している。 $L_1 \sim L_3$ は、各々下記一般式(5)で表される。]

[化5]

一般式(5)



[一般式(5)中、 $X_1 \sim X_5$ は含窒素複素環を形成する元素群であり、炭素原子又は窒素原子から選ばれ、 $X_4$ 及び $X_5$ のうち少なくとも1つは窒素原子を表し、 $X_5$ は前記一般式(1)～(4)におけるIrと配位結合を形成する。 $X_6 \sim X_{11}$ は芳香族5員環又は芳香族6員環を形成する元素群であり、炭素原子又は窒素原子から選ばれ、X

$r_7$ は前記一般式(1)～(4)における $r$ と共有結合を形成する。  
但し、 $X_6 \sim X_{11}$ が芳香族5員環を形成する場合には $X_{11}$ は単なる結合手を表す。]

[請求項2] 前記一般式(1)～(4)における $L_1 \sim L_3$ のうち少なくとも1つの $L_1 \sim L_3$ では、前記一般式(5)において $X_1 \sim X_5$ が形成する含窒素複素環がイミダゾール環であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項3] 前記一般式(1)～(4)における $L_1 \sim L_3$ のうち少なくとも1つの $L_1 \sim L_3$ では、前記一般式(5)において $X_1 \sim X_5$ が形成する含窒素複素環がピラゾール環であることを特徴とする請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

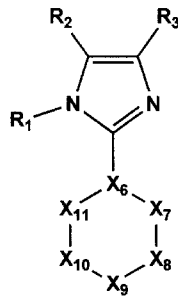
[請求項4] 前記一般式(1)～(4)における $L_1 \sim L_3$ のうち少なくとも1つの $L_1 \sim L_3$ では、前記一般式(5)において $X_1 \sim X_5$ が形成する含窒素複素環がトリアゾール環であることを特徴とする請求項1～3の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項5] 前記一般式(1)～(4)における $L_1 \sim L_3$ のうち少なくとも1つの $L_1 \sim L_3$ では、前記一般式(5)において $X_6 \sim X_{11}$ が芳香族6員環を形成することを特徴とする請求項1～4の何れか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6] 前記一般式(1)～(4)における $L_1 \sim L_3$ のうち少なくとも1つは、前記一般式(5)が下記一般式(6)で表されることを特徴とする請求項1～5の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化6]

一般式(6)



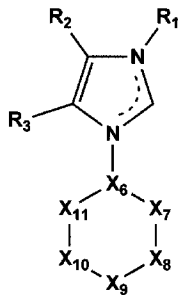
[一般式(6)中、X<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>は前記一般式(5)におけるX<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>と同義である。R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>3</sub>は各々水素原子又は置換基を表し、R<sub>1</sub>とX<sub>11</sub>が環を形成していてもよい。]

[請求項7]

前記一般式(1)～(4)におけるL<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>のうち少なくとも1つは、前記一般式(5)が下記一般式(7)で表されることを特徴とする請求項1～6の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化7]

一般式(7)



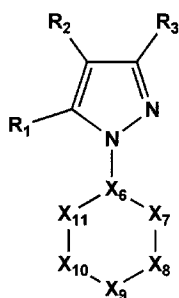
[一般式(7)中、X<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>は前記一般式(5)におけるX<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>と同義である。R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>3</sub>は各々水素原子又は置換基を表し、R<sub>3</sub>とX<sub>11</sub>が環を形成していてもよい。]

[請求項8]

前記一般式(1)～(4)におけるL<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>のうち少なくとも1つは、前記一般式(5)が下記一般式(8)で表されることを特徴とする請求項1～7の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化8]

一般式(8)



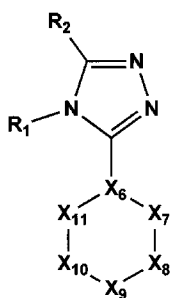
[一般式(8)中、X<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>は前記一般式(5)におけるX<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>と同義である。R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>及びR<sub>3</sub>は各々水素原子又は置換基を表し、R<sub>1</sub>とX<sub>11</sub>が環を形成していてもよい。]

[請求項9]

前記一般式(1)～(4)におけるL<sub>1</sub>～L<sub>3</sub>のうち少なくとも1つは、前記一般式(5)が下記一般式(9)で表されることを特徴とする請求項1～8の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[化9]

一般式(9)



[一般式(9)中、X<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>は前記一般式(5)におけるX<sub>6</sub>～X<sub>11</sub>と同義である。R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は各々水素原子又は置換基を表し、R<sub>1</sub>とX<sub>11</sub>が環を形成していてもよい。]

[請求項10]

前記一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合物の発光極大波長が465nm以下であることを特徴とする請求項1～9の何れか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]

前記一般式(1)～(4)の何れかで表されるイリジウム錯体化合

物の発光極大波長が460nm以下であることを特徴とする請求項1～10の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

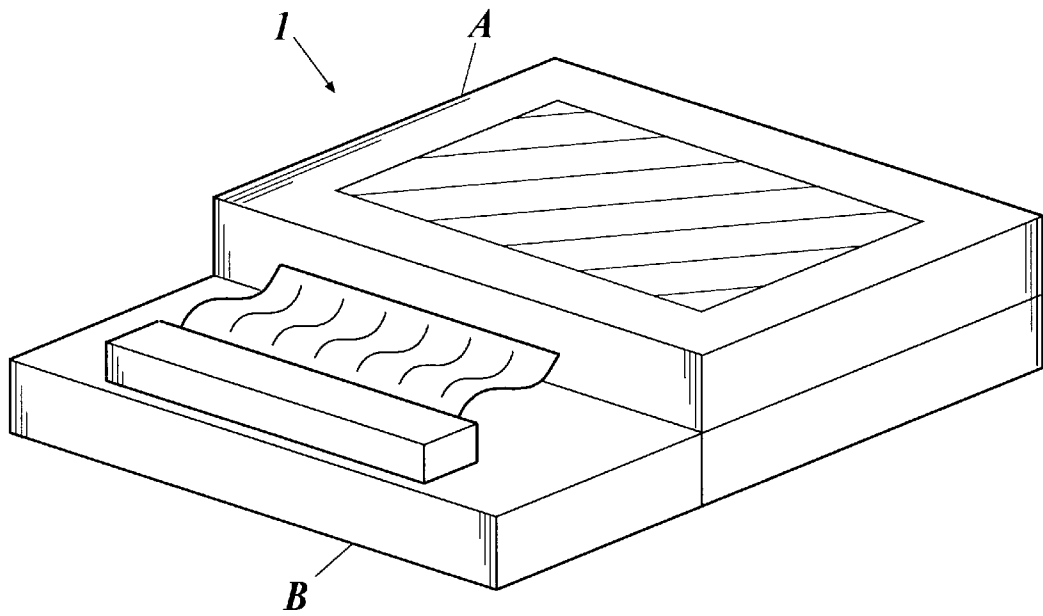
[請求項12] 前記一般式(1)～(4)におけるVは、 $L_1$ ～ $L_3$ と、前記一般式(5)～(9)における $X_9$ で連結していることを特徴とする請求項1～11の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項13] 発光色が白色であることを特徴とする請求項1～12の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

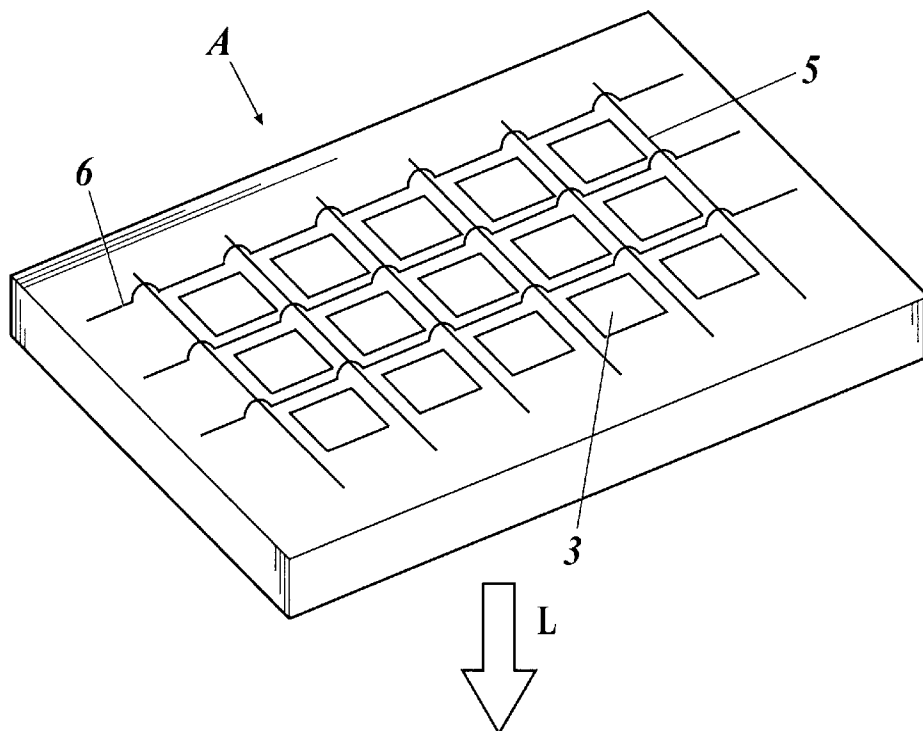
[請求項14] 請求項1～13の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

[請求項15] 請求項1～13の何れか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。

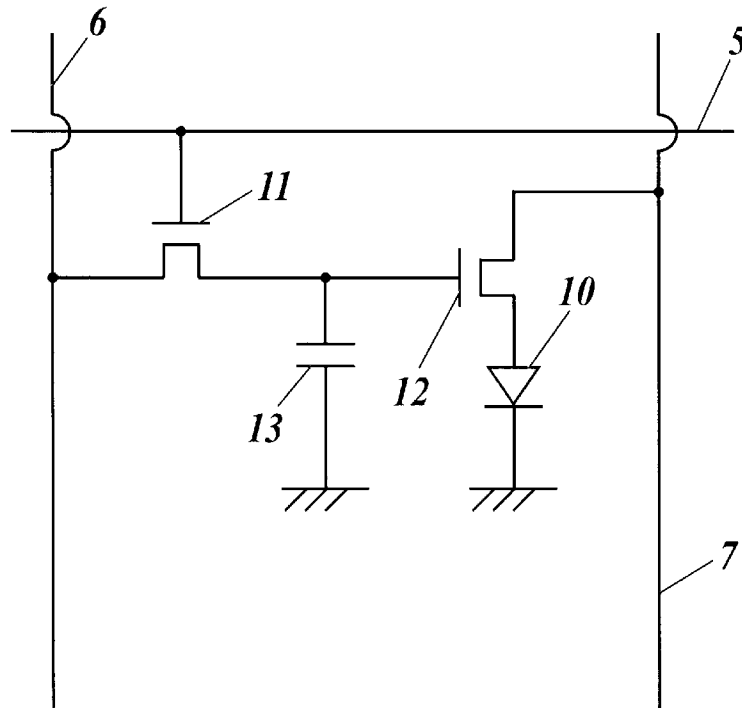
[図1]

**FIG.1**

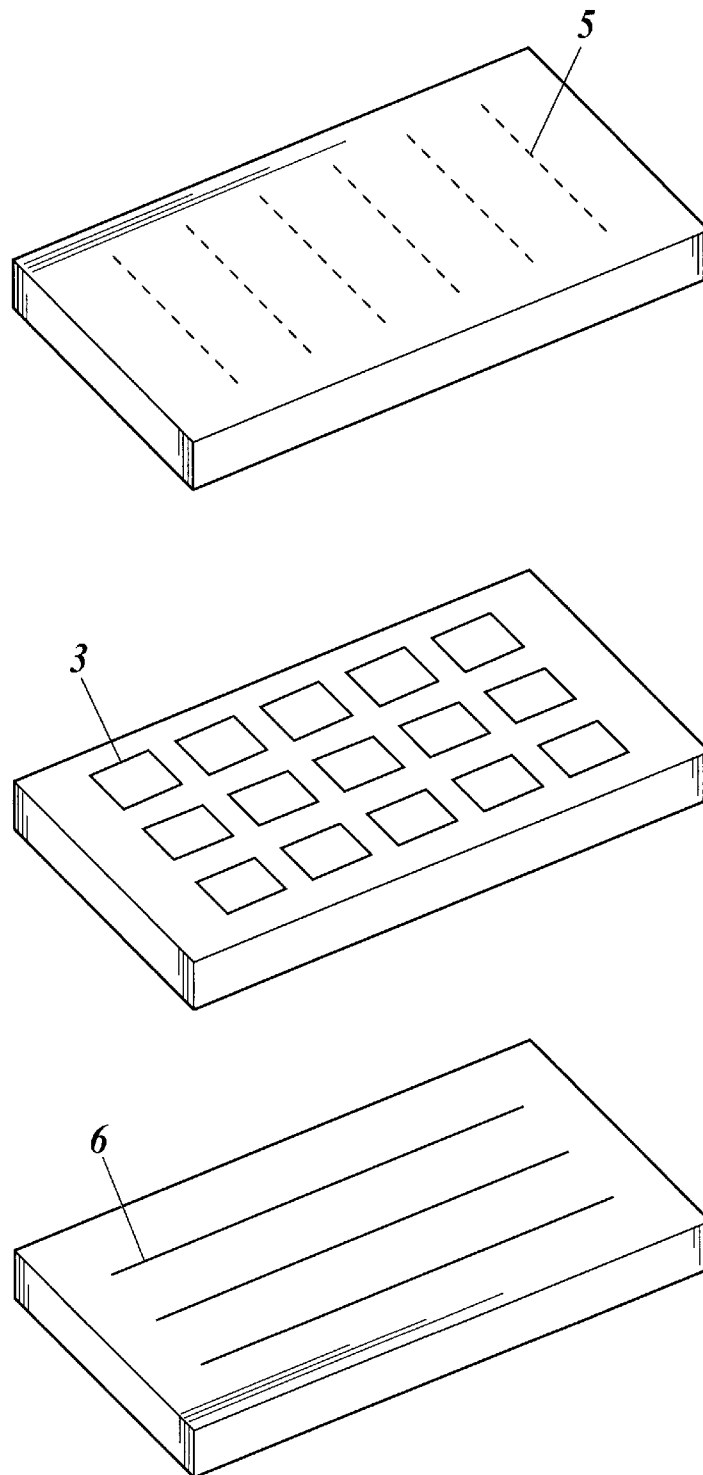
[図2]

**FIG.2**

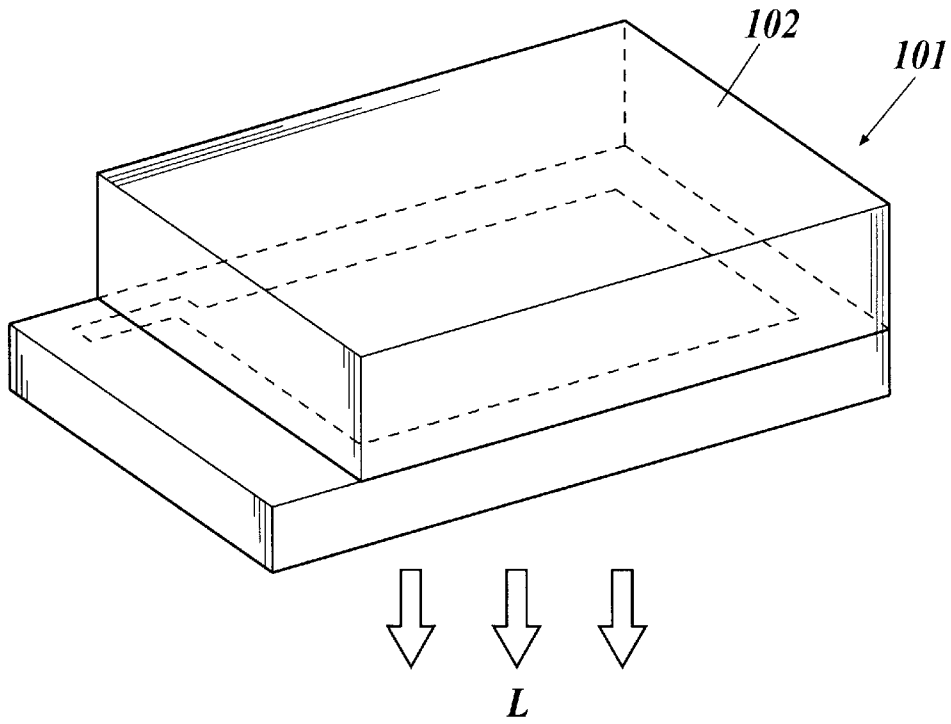
[図3]

**FIG.3**

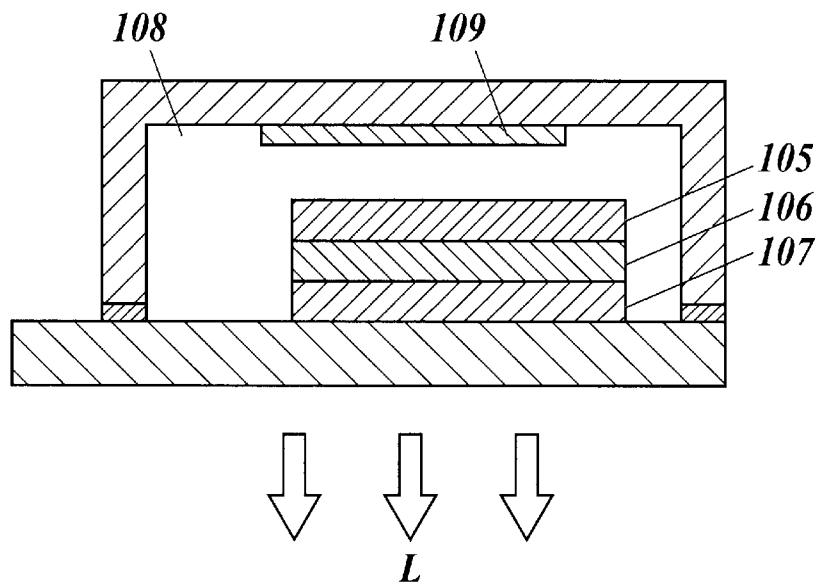
[図4]

**FIG.4**

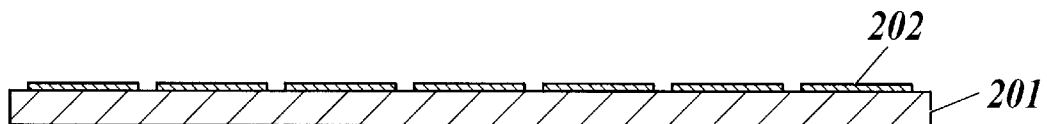
[図5]

**FIG.5**

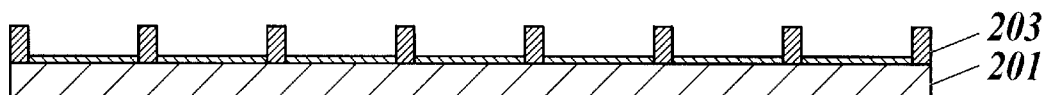
[図6]

**FIG.6**

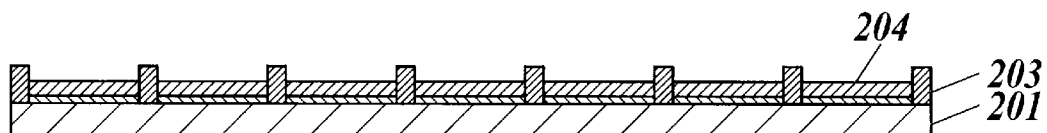
[図7A]

**FIG. 7A**

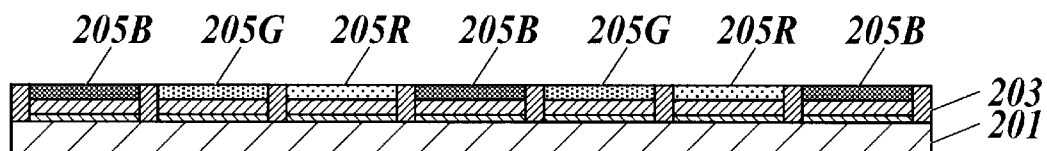
[図7B]

**FIG. 7B**

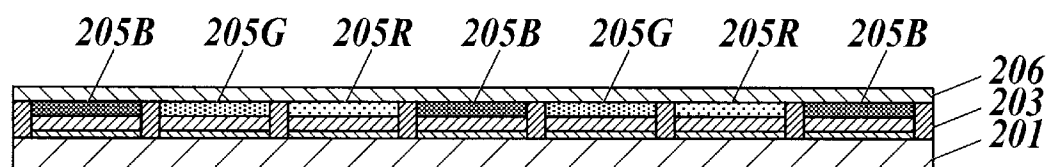
[図7C]

**FIG. 7C**

[図7D]

**FIG. 7D**

[図7E]

**FIG. 7E**

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2013/069842

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, G09F9/30(2006.01)i, H01L27/32(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, C09K11/06, G09F9/30, H01L27/32

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	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

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

CAplus/REGISTRY (STN)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2008/096609 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 14 August 2008 (14.08.2008), claims; paragraphs [0055] to [0057], [0102] to [0104] (compound 1) & TW 200850043 A	1-2, 5, 7, 10-15 3-4, 6, 8-9
X A	WO 2007/018067 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 15 February 2007 (15.02.2007), claims; paragraph [0079] (complex B); paragraph [0121] (compound 1) & US 2010/0219397 A1 & KR 10-2008-0037006 A & CN 101253185 A	1-2, 5, 7, 10-15 3-4, 6, 8-9

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  
30 September, 2013 (30.09.13)

Date of mailing of the international search report  
08 October, 2013 (08.10.13)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/069842

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2009-526071 A (Universal Display Corp.), 16 July 2009 (16.07.2009), claims; paragraph [0093] (compounds 23, 29); paragraphs [0240], [0244] & US 2007/0190359 A1 & US 2008/0297033 A1 & US 2011/0073849 A1 & EP 1981898 A & EP 2243785 A1 & EP 2399922 A1 & WO 2007/095118 A2 & WO 2008/156879 A1 & KR 10-2008-0098489 A & CN 101415718 A & BR PI0707552 A & AT 553111 T & TW 200904820 A	1-2, 5-6, 10-15 3-4, 7-9
X A	US 2006/0024522 A1 (Mark E. Thompson), 02 February 2006 (02.02.2006), claims; paragraph [0155] & WO 2005/113704 A2	1-2, 5, 7, 10-15 3-4, 6, 8-9
X A	JP 2011-68848 A (Fujifilm Corp.), 07 April 2011 (07.04.2011), claims; paragraphs [0180] to [0181] (B-45, B-48) & US 2011/0050092 A1	1-2, 5-6, 10-15 3-4, 7-9
X A	WO 2008/140114 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 20 November 2008 (20.11.2008), claims; paragraph [0108] (compound (59)) & JP 2008-311607 A & US 2010/0141126 A1 & US 2010/0141125 A1	1, 3, 5, 8, 10-15 2, 4, 6-7, 9
X A	JP 2007-524585 A (Merck Patent GmbH), 30 August 2007 (30.08.2007), claims; paragraph [0072] (compounds 35, 52) & US 2006/0220004 A1 & US 2010/0227978 A1 & EP 1603923 A & WO 2004/081017 A1 & DE 10310887 A & KR 10-2006-0002810 A & CN 1759120 A	1-2, 5-6, 10-15 3-4, 7-9
X A	JP 2006-128634 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 18 May 2006 (18.05.2006), claims; paragraphs [0110] to [0141] (K24, 26, 31 to 33, 36 to 42, 48 to 50, 53, 55 to 57, 60 to 66, 115 to 120, 122 to 123, 163 to 164, 175 to 176, 178 to 179, 181, 184 to 186, 223 to 224, 226 to 227, 231 to 232, 247 to 249, 252 to 253, 257 to 258, 271 to 280, 282, 295 to 297, 391, 394, 397, 400); paragraph [0206] & US 2006/0073360 A1	1, 3, 5, 8, 10-15 2, 4, 6-7, 9

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, C09K11/06(2006.01)i, G09F9/30(2006.01)i, H01L27/32(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, C09K11/06, G09F9/30, H01L27/32

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	1971-2013年
日本国実用新案登録公報	1996-2013年
日本国登録実用新案公報	1994-2013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)  
 CAplus/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
X A	WO 2008/096609 A1 (出光興産株式会社) 2008.08.14, 特許請求の範囲、段落[0055]-[0057]、[0102]-[0104] (化合物1) & TW 200850043 A	1-2, 5, 7, 10-15 3-4, 6, 8-9
X A	WO 2007/018067 A1 (出光興産株式会社) 2007.02.15, 特許請求の範囲、段落[0079] (錯体B)、[0121] (化合物1) & US 2010/0219397 A1 & KR 10-2008-0037006 A & CN 101253185 A	1-2, 5, 7, 10-15 3-4, 6, 8-9

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

\* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「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 30.09.2013	国際調査報告の発送日 08.10.2013
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 越河 勉 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	20 9313
--	---	---------

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
X A	JP 2009-526071 A (ユニバーサル ディスプレイ コーポレイション) 2009.07.16, 特許請求の範囲、段落[0093] (化合物 23、29)、 [0240]、[0244] & US 2007/0190359 A1 & US 2008/0297033 A1 & US 2011/0073849 A1 & EP 1981898 A & EP 2243785 A1 & EP 2399922 A1 & WO 2007/095118 A2 & WO 2008/156879 A1 & KR 10-2008-0098489 A & CN 101415718 A & BR PI0707552 A & AT 553111 T & TW 200904820 A	1-2, 5-6, 10-15 3-4, 7-9
X A	US 2006/0024522 A1 (Mark E. Thompson) 2006.02.02, 特許請求の範囲、段落[0155] & WO 2005/113704 A2	1-2, 5, 7, 10-15 3-4, 6, 8-9
X A	JP 2011-68848 A (富士フイルム株式会社) 2011.04.07, 特許請求の範囲、段落[0180]-[0181] (B-45、B-48) & US 2011/0050092 A1	1-2, 5-6, 10-15 3-4, 7-9
X A	WO 2008/140114 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2008.11.20, 特許請求の範囲、段落[0108] (化合物 (59)) & JP 2008-311607 A & US 2010/0141126 A1 & US 2010/0141125 A1	1, 3, 5, 8, 10-15 2, 4, 6-7, 9
X A	JP 2007-524585 A (メルク パテント ゲーエムベーハー) 2007.08.30, 特許請求の範囲、段落[0072] (化合物 35, 52) & US 2006/0220004 A1 & US 2010/0227978 A1 & EP 1603923 A & WO 2004/081017 A1 & DE 10310887 A & KR 10-2006-0002810 A & CN 1759120 A	1-2, 5-6, 10-15 3-4, 7-9
X A	JP 2006-128634 A (富士写真フイルム株式会社) 2006.05.18, 特許請求の範囲、段落[0110]-[0141] (K24, 26, 31 乃至 33, 36 乃至 42, 48 乃至 50, 53, 55 乃至 57, 60 乃至 66, 115 乃至 120, 122 乃至 123, 163 乃至 164, 175 乃至 176, 178 乃至 179, 181, 184 乃至 186, 223 乃至 224, 226 乃至 227, 231 乃至 232, 247 乃至 249, 252 乃至 253, 257 乃至 258, 271 乃至 280, 282, 295 乃至 297, 391, 394, 397, 400)、 [0206] & US 2006/0073360 A1	1, 3, 5, 8, 10-15 2, 4, 6-7, 9