

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6298602号
(P6298602)

(45) 発行日 平成30年3月20日 (2018. 3. 20)

(24) 登録日 平成30年3月2日 (2018. 3. 2)

(51) Int. Cl.	F I
H O 1 L 51/50 (2006.01)	H O 5 B 33/14 B

請求項の数 6 (全 108 頁)

(21) 出願番号	特願2013-157321 (P2013-157321)	(73) 特許権者	000153878
(22) 出願日	平成25年7月30日 (2013. 7. 30)		株式会社半導体エネルギー研究所
(65) 公開番号	特開2014-45180 (P2014-45180A)		神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地
(43) 公開日	平成26年3月13日 (2014. 3. 13)	(72) 発明者	尾坂 晴恵
審査請求日	平成28年7月27日 (2016. 7. 27)		神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社
(31) 優先権主張番号	特願2012-169081 (P2012-169081)		半導体エネルギー研究所内
(32) 優先日	平成24年7月31日 (2012. 7. 31)	(72) 発明者	門間 裕史
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社
			半導体エネルギー研究所内
		(72) 発明者	北野 靖
			神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社
			半導体エネルギー研究所内
		(72) 発明者	下垣 智子
			神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社
			半導体エネルギー研究所内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光素子、発光装置、電子機器、及び照明装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一対の電極間に有機化合物を有し、

前記有機化合物が、

2 位及び 3 位が無置換のジベンゾ [f , h] キノキサリン骨格と、

第 1 の正孔輸送性骨格と、

第 2 の正孔輸送性骨格と、

第 1 のアリーレン骨格と、

第 2 のアリーレン骨格と、

を有し、

前記ジベンゾ [f , h] キノキサリン骨格と、前記第 1 の正孔輸送性骨格とが前記第 1 のアリーレン骨格を介して結合し、

前記ジベンゾ [f , h] キノキサリン骨格と、前記第 2 の正孔輸送性骨格とが前記第 2 のアリーレン骨格を介して結合し、

前記第 1 の正孔輸送性骨格は、置換もしくは無置換のジベンゾチオフエン骨格、置換もしくは無置換のジベンゾフラン骨格、または置換もしくは無置換のカルバゾール骨格のいずれかであり、

前記第 2 の正孔輸送性骨格は、置換もしくは無置換のジベンゾチオフエン骨格、置換もしくは無置換のジベンゾフラン骨格、または置換もしくは無置換のカルバゾール骨格のいずれかである

ことを特徴とする発光素子。

【請求項 2】

請求項 1 において、

前記ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の 6 位または 7 位に前記第 1 のアリーレン骨格が結合している

ことを特徴とする発光素子。

【請求項 3】

請求項 1 または請求項 2 において、

前記ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の 10 位または 11 位に前記第 2 のアリーレン骨格が結合している

ことを特徴とする発光素子。

【請求項 4】

請求項 1 乃至請求項 3 のいずれか一に記載の発光素子を用いた発光装置。

【請求項 5】

請求項 4 に記載の発光装置を用いた電子機器。

【請求項 6】

請求項 4 に記載の発光装置を用いた照明装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、発光素子に関する。特に、有機エレクトロルミネッセンス (EL: Electroluminescence) を利用した発光素子に関する。また、該発光素子を有する発光装置、電子機器、及び照明装置に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、エレクトロルミネッセンスを利用した発光素子の研究開発が盛んに行われている。これら発光素子の基本的な構成は、一对の電極間に発光物質を含む発光層を挟んだものである。この素子に電圧を印加することにより、発光物質からの発光を得ることができる。

【0003】

このような発光素子は自発光型であるため、液晶ディスプレイに比べ画素の視認性が高く、バックライトが不要である等の利点があり、フラットパネルディスプレイ素子として好適であると考えられている。また、このような発光素子は、薄型軽量に作製できることも大きな利点である。さらに非常に応答速度が速いことも特徴の一つである。

【0004】

これらの発光素子は膜状に形成することが可能であるため、面状に発光を得ることができる。よって、面状の発光を利用した大面積の素子を容易に形成することができる。このことは、白熱電球や LED に代表される点光源、あるいは蛍光灯に代表される線光源では得難い特色であるため、照明等に応用できる面光源としての利用価値も高い。

【0005】

そのエレクトロルミネッセンスを利用した発光素子は、発光物質が有機化合物であるか、無機化合物であるかによって大別できる。発光物質に有機化合物を用い、一对の電極間に該有機化合物を含む層を設けた有機 EL 素子の場合、発光素子に電圧を印加することにより、陰極から電子が、陽極から正孔 (ホール) がそれぞれ発光性の有機化合物を含む層に注入され、電流が流れる。そして、注入した電子及び正孔が発光性の有機化合物を励起状態に至らしめ、励起された発光性の有機化合物から発光を得るものである。

【0006】

有機化合物が形成する励起状態の種類としては、一重項励起状態と三重項励起状態が可能であり、一重項励起状態 (S^*) からの発光が蛍光、三重項励起状態 (T^*) からの発光が燐光と呼ばれている。また、発光素子におけるその統計的な生成比率は、 $S^* : T^*$

10

20

30

40

50

= 1 : 3 であると考えられている。

【0007】

一重項励起状態を発光に変換する化合物（以下、蛍光性化合物と称す）では室温において、三重項励起状態からの発光（燐光）は観測されず、一重項励起状態からの発光（蛍光）のみが観測される。したがって、蛍光性化合物を用いた発光素子における内部量子効率（注入したキャリアに対して発生するフォトンの割合）の理論的限界は、 $S^* : T^* = 1 : 3$ であることを根拠に 25 % とされている。

【0008】

一方、三重項励起状態を発光に変換する化合物（以下、燐光性化合物と称す）を用いれば、三重項励起状態からの発光（燐光）が観測される。また、燐光性化合物は項間交差（一重項励起状態から三重項励起状態へ移ること）が起こりやすいため、内部量子効率は 100 % まで理論上は可能となる。つまり、蛍光性化合物に比べて高い発光効率を得ることが可能となる。このような理由から、高効率な発光素子を実現するために、燐光性化合物を用いた発光素子の開発が近年盛んに行われている。

【0009】

上述した燐光性化合物を用いて発光素子の発光層を形成する場合、燐光性化合物の濃度消光や三重項-三重項消滅による消光を抑制するために、他の化合物からなるマトリクス中に該燐光性化合物が分散するようにして形成することが多い。この時、マトリクスとなる化合物はホスト材料、燐光性化合物のようにマトリクス中に分散される化合物はゲスト材料と呼ばれる。

【0010】

燐光性化合物をゲスト材料とする場合、ホスト材料に必要とされる性質は、該燐光性化合物よりも大きな三重項励起エネルギー準位（基底状態と三重項励起状態とのエネルギー差、 T_1 準位ともいう）を有することである。

【0011】

また、一重項励起エネルギー準位（基底状態と一重項励起状態とのエネルギー差、 S_1 準位ともいう）は T_1 準位よりも大きいため、大きな T_1 準位を有する物質は大きな S_1 準位をも有する。したがって、上述したような大きな T_1 準位を有する物質は、蛍光性化合物を発光物質として用いた発光素子においても有益である。

【0012】

燐光性化合物をゲスト材料とする場合のホスト材料の一例として、ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格を有する化合物の研究がなされている（例えば、特許文献 1 ~ 2）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0013】

【特許文献 1】国際公開第 03 / 058667 号パンフレット

【特許文献 2】特開 2007-189001 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0014】

しかし、上記ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格を有する化合物は、平面的な構造を有しているため、結晶化しやすい。結晶化しやすい化合物を用いた発光素子は寿命が短い。また、立体的に嵩高い構造の化合物とするために、ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格に他の骨格を直接結合させると、共役系が広がり、 T_1 準位の低下を引き起こす場合がある。

【0015】

また、低消費電力で信頼性の高い発光装置、電子機器、及び照明装置を実現するために、駆動電圧が低い発光素子、電流効率の高い発光素子、または長寿命の発光素子が求められている。

【0016】

上記課題に鑑み、本発明の一態様は、駆動電圧が低い発光素子、電流効率が低い発光素子、及び／または長寿命な発光素子を提供することを目的とする。とくに、ジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格を含む有機化合物を発光層に用いることで、駆動電圧が低い発光素子、電流効率が低い発光素子、及び／または長寿命な発光素子を提供することを目的とする。また、本発明の一態様は、該発光素子を用いることにより、消費電力の低減された発光装置、電子機器、及び照明装置を提供することを目的とする。

【0017】

なお、以下に開示する発明は、上記課題の少なくともいずれか一を解決することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

10

【0018】

キノキサリン骨格を有する有機化合物は電子輸送性が高く、発光素子に用いることで駆動電圧の低い素子を実現できる。一方で、キノキサリン骨格は平面的な構造である。平面的な構造の有機化合物は、膜にした場合に結晶化しやすく、発光素子に用いても寿命が短いという問題がある。さらに、キノキサリン骨格は正孔受容性に乏しい。正孔を容易に受け取ることができない有機化合物を発光層のホスト材料に用いると、電子と正孔の再結合領域が発光層の界面に集中し、発光素子の寿命の低下を招く。

【0019】

これらの課題を解決するためには、正孔輸送性骨格を分子内に導入する手法が考えられるが、キノキサリン骨格と正孔輸送性骨格を直接結合させると、共役系が広がり、バンドギャップの低下及び三重項励起エネルギーの低下が起こる。

20

【0020】

しかし、本発明の一態様は、ジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格と、正孔輸送性骨格であるジベンゾチオフェン骨格、ジベンゾフラン骨格、またはカルバゾール骨格の中から選ばれた正孔輸送性骨格と、アリーレン骨格と、を有する有機化合物を用いた発光素子である。該有機化合物を有する発光素子とすることで、上記課題が解決できる。より詳細には以下の通りである。

【0021】

一対の電極間に挟持された発光層を含む発光素子において、発光層は、有機化合物を有し、有機化合物が、2位及び3位が無置換のジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格と、置換もしくは無置換のジベンゾチオフェン骨格、置換もしくは無置換のジベンゾフラン骨格、または置換もしくは無置換のカルバゾール骨格の中から選ばれた正孔輸送性骨格と、アリーレン骨格と、を有し、2位及び3位が無置換のジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格と、正孔輸送性骨格がアリーレン骨格を介して結合することを特徴とする発光素子である。

30

【0022】

該有機化合物は、電子を輸送する骨格であるジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格の2位および3位が無置換であるため、分子間のパッキングが密になり、優れた電子輸送性を示す。

【0023】

40

また、該有機化合物は、ジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格と、ジベンゾチオフェン骨格、ジベンゾフラン骨格、またはカルバゾール骨格の中から選ばれた正孔輸送性骨格と、がアリーレン骨格を介して結合する。ジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格に正孔輸送性骨格が導入されることにより、立体的に嵩高い構造となり、膜にした場合に結晶化しにくく、発光素子に用いることで長寿命な素子を実現できる。

【0024】

さらに、該有機化合物は、ジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格と正孔輸送性骨格が、アリーレン骨格を介して結合しているため、直接結合する場合に比べてバンドギャップの低下及び三重項励起エネルギーの低下を防ぐことができる。したがって、該有機化合物を発光素子に用いることで、高い電流効率、低い駆動電圧、及び長寿命な発光素子を実現で

50

きる。

【0025】

また、上記構成において、該有機化合物が、該正孔輸送性骨格を1つまたは2つ有すると好ましい。なお、該有機化合物が該正孔輸送性骨格を2つ有するとは、該有機化合物が、第1のアリーレン骨格を介してジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格と結合する第1の正孔輸送性骨格と、第2のアリーレン骨格を介してジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格と結合する第2の正孔輸送性骨格とを有することを意味する。

【0026】

また、上記各構成において、有機化合物は、分子量が2000以下であると好ましい。また、該有機化合物の分子量が1000以下であると、さらに好ましい。有機化合物の分子量を2000以下とすることで、該有機化合物を蒸着する際に、蒸着効率を向上させることができる。また、該有機化合物の分子量の下限としては、耐熱性の観点から、該有機化合物の分子量を500以上とすると、成膜後の有機化合物の膜質が安定化し好ましい。

【0027】

また、上記構成において、アリーレン骨格は、2位及び3位が無置換のジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の6位または7位に結合すると、合成が簡便であるため好ましい。このとき、アリーレン骨格が2つの場合は、置換位置が6位と11位、または置換位置が7位と10位の組み合わせであると原料の合成が簡便となる。また、ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格とアリーレン骨格を結合させる場合、該ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の6位、7位、10位、または11位に置換をさせる方が、該ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の5位、8位、9位、または12位に置換させるよりも好ましい。ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の6位、7位、10位、及び11位にアリーレン骨格を結合させることにより、ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格と、アリーレン骨格との間で立体障害が生じづらく、化学的に安定する。

【0028】

また、上記各構成において、有機化合物から、LC分離後、アルゴンガスを30 eV以上100 eV以下のエネルギーで衝突させるLC/MS分析（液体クロマトグラフ質量分析（Liquid Chromatography Mass Spectrometry, 略称：LC/MS分析））で、少なくともプレカーサーイオンと、プレカーサーイオンの数値から $m/z = 55$ を差分した数値のプロダクトイオンと、が検出されると好ましい。

【0029】

また、本発明の他の一態様は、一对の電極間に挟持された発光層を含む発光素子において、発光層は、有機化合物を有し、有機化合物が、少なくとも2位及び3位が無置換のジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格を有し、有機化合物から、LC分離後、アルゴンガスを30 eV以上100 eV以下のエネルギーで衝突させるLC/MS分析で、少なくともプレカーサーイオンと、プレカーサーイオンの数値から $m/z = 55$ を差分した数値のプロダクトイオンと、が検出されることを特徴とする発光素子である。このとき、アルゴンガスを50 eV以上のエネルギーで衝突させるLC/MS分析の方が、プロダクトイオンが検出されやすく、より好ましい。

【0030】

2位及び3位が無置換のジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格を含む有機化合物であると、プレカーサーイオンの数値から、 $m/z = 55$ を差分した位置に2位及び3位が無置換のジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格由来のプロダクトイオンが検出される。したがって、発光素子に含まれる有機化合物をLC/MS分析を用いて分析することにより、混合物中の有機化合物の骨格を特定できる。

【0031】

このような発光素子を用いた発光装置（画像表示デバイス）は低消費電力を実現できる。したがって、本発明の一態様は、上述の発光素子を用いた発光装置である。また、その発光装置を用いた表示部に用いた電子機器及び発光部に用いた照明装置も本発明の一態様

10

20

30

40

50

に含むものとする。

【0032】

なお、本明細書中における発光装置とは、発光素子を用いた画像表示デバイスを含む。また、発光素子にコネクタ、異方導電性フィルム、またはTCP (Tape Carrier Package) が取り付けられたモジュール、TCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、又は発光素子にCOG (Chip On Glass) 方式によりIC (集積回路) が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。さらに、照明器具等に用いられる発光装置も含むものとする。

【発明の効果】

【0033】

10

本発明の一態様は、駆動電圧が低い発光素子、電流効率が低い発光素子、及び／または長寿命な発光素子を提供できる。とくに、ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格を含む有機化合物を発光層に用いることで、駆動電圧が低い発光素子、電流効率が低い発光素子、及び／または長寿命な発光素子を提供できる。また、本発明の一態様は、該発光素子を用いることにより、消費電力の低減された発光装置、電子機器、及び照明装置を提供できる。

【図面の簡単な説明】

【0034】

【図1】本発明の一態様の発光素子を説明する図。

【図2】本発明の一態様の発光装置を説明する図。

20

【図3】本発明の一態様の発光装置を説明する図。

【図4】本発明の一態様の電子機器を説明する図。

【図5】本発明の一態様の照明装置を説明する図。

【図6】7mDBTPDBq-II (略称) の¹H NMRチャートを示す図。

【図7】7mDBTPDBq-II (略称) のLC-MS分析結果を示す図。

【図8】7mDBTPDBq-II (略称) のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図9】7mDBTPDBq-II (略称) の薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図10】7mDBTBPDq-II (略称) の¹H NMRチャートを示す図。

30

【図11】7mDBTBPDq-II (略称) のLC-MS分析結果を示す図。

【図12】7mDBTBPDq-II (略称) のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図13】7mDBTBPDq-II (略称) の薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図14】6-ヨードジベンゾ [f, h] キノキサリンの¹H NMRチャートを示す図。

。

【図15】6mDBTPDBq-II (略称) の¹H NMRチャートを示す図。

【図16】6mDBTPDBq-II (略称) のLC-MS分析結果を示す図。

【図17】6mDBTPDBq-II (略称) のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

40

【図18】6mDBTPDBq-II (略称) の薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図19】7, 10mCzP2DBq (略称) の¹H NMRチャートを示す図。

【図20】7, 10mCzP2DBq (略称) のLC-MS分析結果を示す図。

【図21】7, 10mCzP2DBq (略称) のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図22】7, 10mCzP2DBq (略称) の薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図23】6, 11mCzP2DBq (略称) の¹H NMRチャートを示す図。

50

【図 2 4】 6, 1 1 m C z P 2 D B q (略称) の L C - M S 分析結果を示す図。

【図 2 5】 6, 1 1 m C z P 2 D B q (略称) のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図 2 6】 6, 1 1 m C z P 2 D B q (略称) の薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図 2 7】 実施例の発光素子を説明する図。

【図 2 8】 実施例の発光素子の電流密度－輝度特性を示す図。

【図 2 9】 実施例の発光素子の電圧－輝度特性を示す図。

【図 3 0】 実施例の発光素子の輝度－電流効率特性を示す図。

【図 3 1】 実施例の発光素子の電圧－電流特性を示す図。

10

【図 3 2】 実施例の発光素子の電流密度－輝度特性を示す図。

【図 3 3】 実施例の発光素子の電圧－輝度特性を示す図。

【図 3 4】 実施例の発光素子の輝度－電流効率特性を示す図。

【図 3 5】 実施例の発光素子の電圧－電流特性を示す図。

【図 3 6】 実施例の発光素子の信頼性試験結果を示す図。

【図 3 7】 実施例の発光素子の電流密度－輝度特性を示す図。

【図 3 8】 実施例の発光素子の電圧－輝度特性を示す図。

【図 3 9】 実施例の発光素子の電圧－電流特性を示す図。

【図 4 0】 実施例の発光素子の輝度－色度座標特性を示す図。

【図 4 1】 実施例の発光素子の輝度－パワー効率特性を示す図。

20

【図 4 2】 実施例の発光素子の輝度－外部量子効率特性を示す図。

【図 4 3】 実施例の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【図 4 4】 実施例の発光素子の輝度－電流効率特性を示す図。

【図 4 5】 実施例の発光素子の輝度－色度座標特性を示す図。

【図 4 6】 実施例の発光素子の輝度－外部量子効率特性を示す図。

【図 4 7】 実施例の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【図 4 8】 D B q (略称) の L C - M S 分析結果を示す図。

【図 4 9】 2 P D B q (略称) の L C - M S 分析結果を示す図。

【発明を実施するための形態】

【0 0 3 5】

30

以下、本発明の実施の態様について図面を用いて詳細に説明する。但し、本発明は以下の説明に限定されず、本発明の趣旨及びその範囲から逸脱することなくその形態及び詳細を様々に変更し得ることは当業者であれば容易に理解される。従って、本発明は以下に示す実施の形態の記載内容に限定して解釈されるものではない。

【0 0 3 6】

(実施の形態 1)

本実施の形態では、一対の電極間に挟持された発光層を含む発光素子について、図 1 を用いて説明する。

【0 0 3 7】

まず、図 1 (A) に示す発光素子について、以下説明を行う。

40

【0 0 3 8】

本実施の形態に示す発光素子は、図 1 (A) に示すように第 1 の電極 1 0 1 と第 2 の電極 1 0 3 の間に、E L 層 1 0 2 が挟持されており、E L 層 1 0 2 は、少なくとも発光層 1 1 3 を含み、発光層 1 1 3 の他に正孔注入層 1 1 1、正孔輸送層 1 1 2、電子輸送層 1 1 4、電子注入層 1 1 5 などを含んで形成される。なお、本実施の形態においては、第 1 の電極 1 0 1 を陽極として用い、第 2 の電極 1 0 3 を陰極として用いる。

【0 0 3 9】

また、発光層 1 1 3 は、有機化合物を含み、該有機化合物が、2 位及び 3 位が無置換のジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格と、置換もしくは無置換のジベンゾチオフェン骨格、置換もしくは無置換のジベンゾフラン骨格、または置換もしくは無置換のカルバゾール

50

骨格の中から選ばれた正孔輸送性骨格と、アリーレン骨格と、を有し、2位及び3位が無置換のジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格と正孔輸送性骨格が、アリーレン骨格を介して結合する。

【0040】

ジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格と、ジベンゾチオフェン骨格、ジベンゾフラン骨格、またはカルバゾール骨格の中から選ばれた正孔輸送性骨格と、がアリーレン骨格を介して結合することにより、ジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格に正孔輸送性骨格が導入されることにより、立体的に嵩高い構造となり、膜にした場合に結晶化しにくく、発光素子に用いることで長寿命な素子を実現できる。その上、該有機化合物は、ジベンゾ〔f, h〕キノキサリン骨格と正孔輸送性骨格とが、アリーレン骨格を介して結合しているため、直接結合する場合に比べてバンドギャップの低下及びT1準位の低下を防ぐことができる。

10

【0041】

したがって、上記有機化合物を発光素子に用いることで、高い電流効率、低い駆動電圧、及び長寿命な発光素子を実現できる。

【0042】

以下に本実施の形態に示す発光素子について、より詳細に説明する。

【0043】

基板100は発光素子の支持体として用いられる。基板100としては、例えばガラス、石英、又はプラスチックなどを用いることができる。また可撓性基板を用いてもよい。可撓性基板とは、曲げることができる（フレキシブル）基板のことであり、例えば、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエーテルスルフォンからなるプラスチック基板等が挙げられる。また、フィルム（ポリプロピレン、ポリエステル、ポリフッ化ビニル、ポリ塩化ビニル等からなる）、無機蒸着フィルムなどを用いることもできる。なお、発光素子の作製工程において支持体として機能するものであれば、これら以外のものでもよい。

20

【0044】

第1の電極101および第2の電極103には、金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることができる。具体的には、酸化インジウム－酸化スズ（ITO: Indium Tin Oxide）、シリコンまたは酸化シリコンを含有した酸化インジウム－酸化スズ、酸化インジウム－酸化亜鉛、酸化タングステン及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム、金（Au）、白金（Pt）、ニッケル（Ni）、タングステン（W）、クロム（Cr）、モリブデン（Mo）、鉄（Fe）、コバルト（Co）、銅（Cu）、パラジウム（Pd）、チタン（Ti）の他、元素周期表の第1族または第2族に属する元素、すなわちリチウム（Li）やセシウム（Cs）等のアルカリ金属、およびマグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金、ユウロピウム（Eu）、イッテルビウム（Yb）等の希土類金属およびこれらを含む合金、その他、グラフェン等を用いることができる。なお、第1の電極101および第2の電極103は、例えばスパッタリング法や蒸着法（真空蒸着法を含む）等により形成することができる。

30

【0045】

正孔注入層111、及び正孔輸送層112に用いる正孔輸送性の高い物質としては、 π 電子過剰型複素芳香族化合物（例えばカルバゾール誘導体やインドール誘導体）、または芳香族アミン化合物を用いることができる。例えば、4, 4'-ビス〔N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：NPB）、N, N'-ビス（3-メチルフェニル）-N, N'-ジフェニル〔1, 1'-ビフェニル〕-4, 4'-ジアミン（略称：TPD）、4, 4'-ビス〔N-（スピロ-9, 9'-ビフルオレン-2-イル）-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：BSPB）、4-フェニル-4'-（9-フェニルフルオレン-9-イル）トリフェニルアミン（略称：BPAPFP）、4-フェニル-4'-（9-フェニルフルオレン-9-イル）トリフェニルアミン（略称：mBPAPFP）、4-フェニル-4'-（9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル）トリ

40

50

フェニルアミン（略称：PCBA1BP）、4，4'-ジフェニル-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBBi1BP）、4-(1-ナフチル)-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBANB）、4，4'-ジ(1-ナフチル)-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBNBB）、9，9-ジメチル-N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]フルオレン-2-アミン（略称：PCBAF）、N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]スピロ-9，9'-ビフルオレン-2-アミン（略称：PCBASf）などの芳香族アミン骨格を有する化合物や、1，3-ビス(N-カルバゾリル)ベンゼン（略称：mCP）、4，4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル（略称：CBP）、3，6-ビス(3，5-ジフェニルフェニル)-9-フェニルカルバゾール（略称：CzTP）、3，3'-ビス(9-フェニル-9H-カルバゾール)（略称：PCCP）などのカルバゾール骨格を有する化合物や、4，4'，4''-(ベンゼン-1，3，5-トリイル)トリ(ジベンゾチオフェン)（略称：DBT3P-II）、2，8-ジフェニル-4-[4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]ジベンゾチオフェン（略称：DBTFLP-II）、4-[4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]-6-フェニルジベンゾチオフェン（略称：DBTFLP-IV）などのチオフェン骨格を有する化合物や、4，4'，4''-(ベンゼン-1，3，5-トリイル)トリ(ジベンゾフラン)（略称：DBF3P-II）、4-{3-[3-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]フェニル}ジベンゾフラン（略称：mmDBFFLBi-II）などのフラン骨格を有する化合物が挙げられる。

10

20

【0046】

上述した中でも、カルバゾール骨格を有する化合物は、信頼性が良好であり、また、正孔輸送性が高く、駆動電圧低減にも寄与するため好ましい。

【0047】

さらに、正孔注入層111、及び正孔輸送層112に用いることのできる材料としては、ポリ(N-ビニルカルバゾール)（略称：PVK）、ポリ(4-ビニルトリフェニルアミン)（略称：PVTPA）、ポリ[N-(4-{N'-[4-(4-ジフェニルアミノ)フェニル]フェニル-N'-フェニルアミノ}フェニル)メタクリルアミド]（略称：PTPDMA）、ポリ[N，N'-ビス(4-ブチルフェニル)-N，N'-ビス(フェニル)ベンジジン]（略称：Poly-TPD）などの高分子化合物を用いることもできる。

30

【0048】

また、正孔注入層111、及び正孔輸送層112は、上記正孔輸送性の高い物質と、アクセプター性を有する物質との混合層を用いてもよい。この場合、キャリア注入性が良好となり好ましい。用いるアクセプター性物質としては、遷移金属酸化物や元素周期表における第4族乃至第8族に属する金属の酸化物を挙げることができる。具体的には、酸化モリブデンが特に好ましい。

【0049】

発光層113は、例えば、電子輸送性材料をホスト材料（第1の有機化合物）として含み、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性材料をゲスト材料（第2の有機化合物）として含み、正孔輸送性材料をアシスト材料（第3の有機化合物）として含んで形成される層であると好ましい。なお、ホスト材料とアシスト材料の関係は、上記構成に限定されず、電子輸送性材料をアシスト材料として用い、正孔輸送性材料をホスト材料としても良い。

40

【0050】

ここで、上記ホスト材料（第1の有機化合物）として、2位及び3位が無置換のジベンゾ[f，h]キノキサリン骨格と、置換もしくは無置換のジベンゾチオフェン骨格、置換もしくは無置換のジベンゾフラン骨格、または置換もしくは無置換のカルバゾール骨格の

50

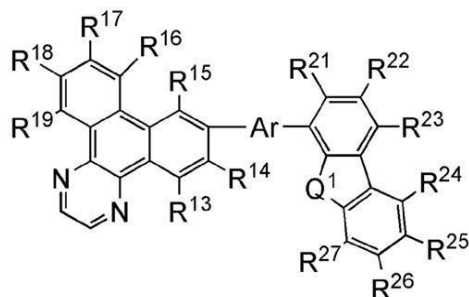
中から選ばれた正孔輸送性骨格と、アリーレン骨格と、を有し、2位及び3位が無置換のジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格と、正孔輸送性骨格が、アリーレン骨格を介して結合する有機化合物を用いる。

【0051】

上記有機化合物としては、具体的には以下の一般式(G1-1)～(G1-3)で表すことができる。

【0052】

【化1】



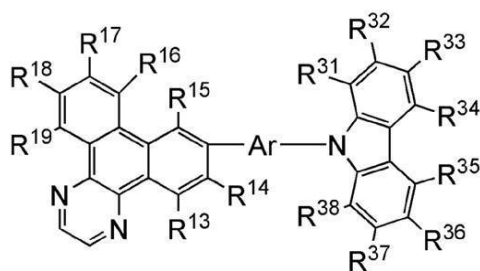
(G1-1)

【0053】

一般式(G1-1)中、Q¹は、硫黄原子、酸素原子又は窒素原子を表し、窒素原子は、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基を置換基として有する。また、R¹³～R¹⁹、及びR²¹～R²⁷は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基を表し、Arは、炭素数6～13の置換又は無置換のアリーレン基を表す。

【0054】

【化2】



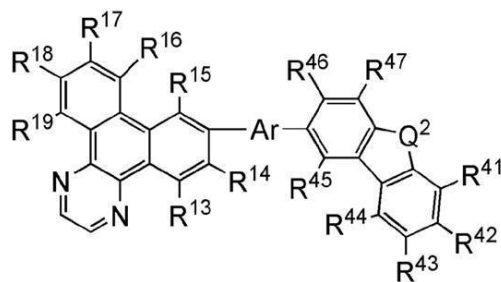
(G1-2)

【0055】

一般式(G1-2)中、R¹³～R¹⁹、及びR³¹～R³⁸は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基を表し、Arは、炭素数6～13の置換又は無置換のアリーレン基を表す。

【0056】

【化 3】



(G1-3)

10

【0057】

一般式 (G1-3) 中、 $R^{13} \sim R^{19}$ 、及び $R^{41} \sim R^{47}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～13 の置換もしくは無置換のアリール基を表し、Ar は、炭素数 6～13 の置換又は無置換のアリーレン基を表し、 Q^2 は、硫黄原子、酸素原子又は窒素原子を表し、窒素原子は、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～13 の置換もしくは無置換のアリール基を置換基として有する。

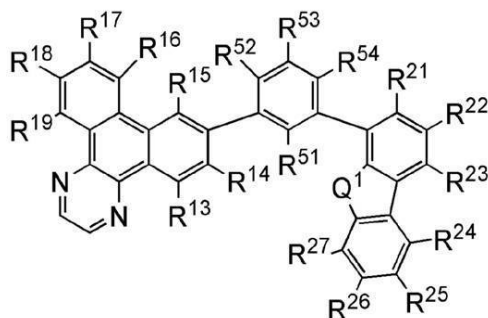
【0058】

一般式 (G1-1) 乃至一般式 (G1-3) において、Ar は置換もしくは無置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換のビフェニルジイル基であることが好ましい。特に Ar は、置換又は無置換のフェニレン基であることが好ましい。さらに Ar は置換又は無置換の m-フェニレン基であることが、高い T1 準位を有する上で好ましい。すなわち、以下の一般式 (G2-1) ～ (G2-3) で表すことができる。

20

【0059】

【化 4】



(G2-1)

30

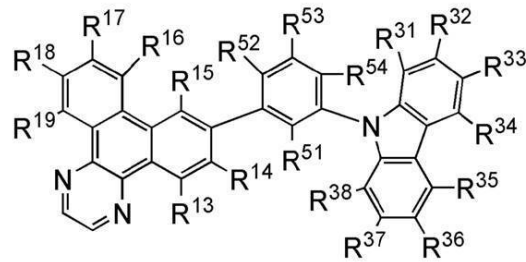
【0060】

一般式 (G2-1) 中、 Q^1 は、硫黄原子、酸素原子又は窒素原子を表し、窒素原子は、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～13 の置換もしくは無置換のアリール基を置換基として有する。また、 $R^{13} \sim R^{19}$ 、 $R^{21} \sim R^{27}$ 、及び $R^{51} \sim R^{54}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～13 の置換もしくは無置換のアリール基を表す。

40

【0061】

【化 5】



(G2-2)

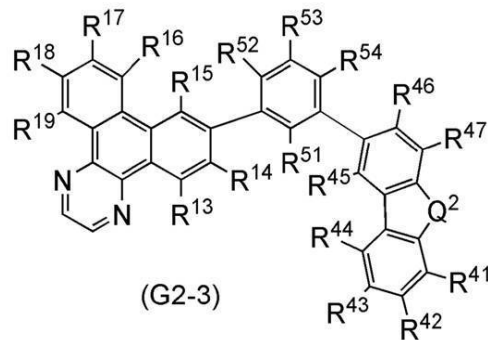
10

【0062】

一般式 (G2-2) 中、 $R^{13} \sim R^{19}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、及び $R^{51} \sim R^{54}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～13 の置換もしくは無置換のアリール基を表す。

【0063】

【化 6】



(G2-3)

20

【0064】

一般式 (G2-3) 中、 $R^{13} \sim R^{19}$ 、 $R^{41} \sim R^{47}$ 、及び $R^{51} \sim R^{54}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～13 の置換もしくは無置換のアリール基を表し、 Q^2 は、硫黄原子、酸素原子又は窒素原子を表し、窒素原子は、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～13 の置換もしくは無置換のアリール基を置換基として有する。

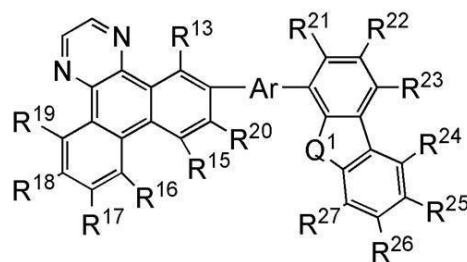
30

【0065】

また、上記有機化合物としては、具体的には以下の一般式 (G3-1) ～ (G3-3) で表すことができる。

【0066】

【化 7】



(G3-1)

40

【0067】

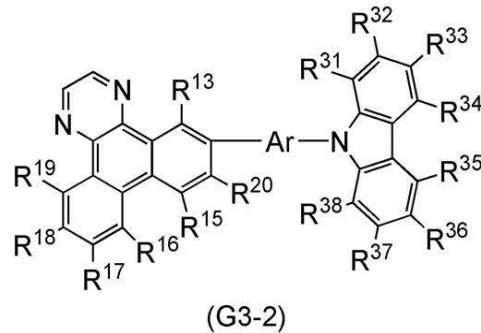
一般式 (G3-1) 中、 Q^1 は、硫黄原子、酸素原子又は窒素原子を表し、窒素原子は、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～13 の置換もしくは無置換のアリール基を

50

置換基として有する。また、 R^{13} 、及び $R^{15} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～14の置換もしくは無置換のアリール基を表し、 Ar は、炭素数6～13の置換又は無置換のアリーレン基を表す。

【0068】

【化8】



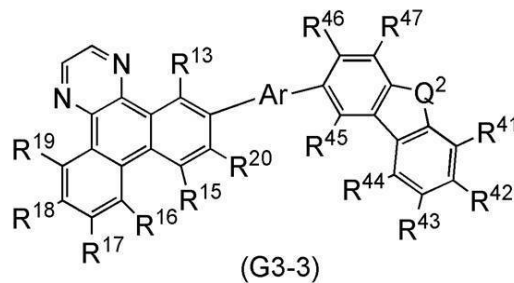
10

【0069】

一般式(G3-2)中、 R^{13} 、 $R^{15} \sim R^{20}$ 、及び $R^{31} \sim R^{38}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～14の置換もしくは無置換のアリール基を表し、 Ar は、炭素数6～13の置換又は無置換のアリーレン基を表す。

【0070】

【化9】



30

【0071】

一般式(G3-3)中、 R^{13} 、 $R^{15} \sim R^{20}$ 、及び $R^{41} \sim R^{47}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～14の置換もしくは無置換のアリール基を表し、 Ar は、炭素数6～13の置換又は無置換のアリーレン基を表し、 Q^2 は、硫黄原子、酸素原子又は窒素原子を表し、窒素原子は、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～14の置換もしくは無置換のアリール基を置換基として有する。

【0072】

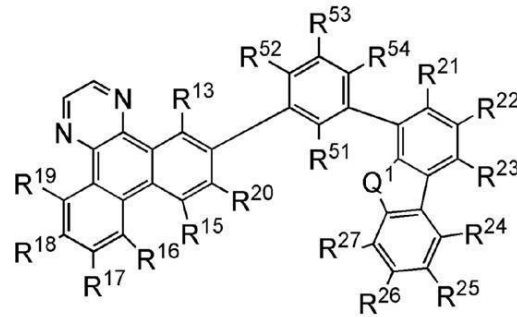
一般式(G3-1)乃至一般式(G3-3)において、 Ar は置換もしくは無置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基であることが好ましい。特に Ar は、置換又は無置換のフェニレン基であることが好ましい。さらに Ar は置換又は無置換のm-フェニレン基であることが、高いT1準位を有する上で好ましい。すなわち、

40

【0073】

以下の一般式(G4-1)～(G4-3)で表すことができる。

【化 1 0】



10

(G4-1)

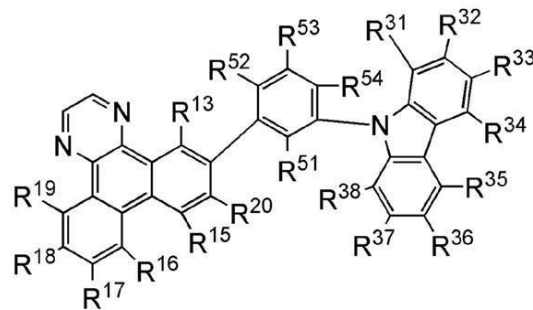
【0074】

一般式 (G4-1) 中、 Q^1 は、硫黄原子、酸素原子又は窒素原子を表し、窒素原子は、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～13 の置換もしくは無置換のアリール基を置換基として有する。また、 R^{13} 、 $R^{15} \sim R^{27}$ 、及び $R^{51} \sim R^{54}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～14 の置換もしくは無置換のアリール基を表す。

【0075】

20

【化 1 1】



30

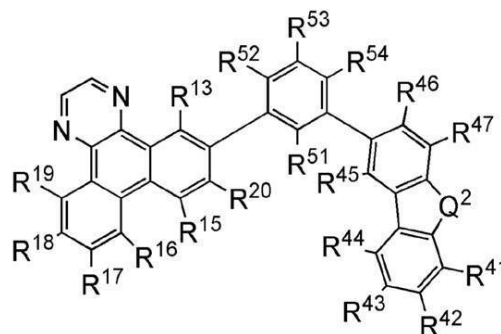
(G4-2)

【0076】

一般式 (G4-2) 中、 R^{13} 、 $R^{15} \sim R^{20}$ 、 $R^{31} \sim R^{38}$ 、及び $R^{51} \sim R^{54}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～14 の置換もしくは無置換のアリール基を表す。

【0077】

【化 1 2】



40

(G4-3)

【0078】

50

一般式 (G 4-3) 中、 R^{13} 、 $R^{15} \sim R^{20}$ 、 $R^{41} \sim R^{47}$ 、及び $R^{51} \sim R^{54}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～14 の置換もしくは無置換のアリール基を表し、 Q^2 は、硫黄原子、酸素原子又は窒素原子を表し、窒素原子は、炭素数 1～4 のアルキル基、又は炭素数 6～14 の置換もしくは無置換のアリール基を置換基として有する。

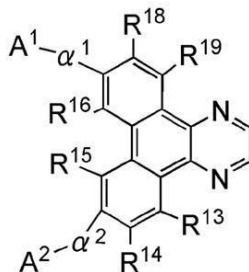
【0079】

また、上記有機化合物としては、具体的には以下の一般式 (G 5-1)、及び (G 5-2) で表すことができる。

【0080】

【化 13】

10



(G5-1)

20

【0081】

一般式 (G 5-1) 中、 $R^{13} \sim R^{16}$ 、 R^{18} 、及び R^{19} は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1～6 のアルキル基、置換もしくは無置換のフェニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、 α^1 及び α^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換のビフェニルジイル基を表し、 A^1 及び A^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のカルbazolリル基、置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基、又は置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基を表す。

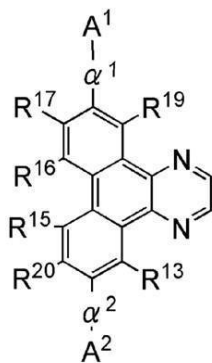
【0082】

また、一般式 (G 5-1) 中、 $R^{13} \sim R^{16}$ 、 R^{18} 、及び R^{19} のいずれかが、フェニル基又はビフェニル基を表す場合、該フェニル基又は該ビフェニル基は、置換基として、炭素数 1～6 のアルキル基を有していても良い。

30

【0083】

【化 14】



(G5-2)

40

【0084】

一般式 (G 5-2) 中、 R^{13} 、 $R^{15} \sim R^{17}$ 、 R^{19} 、及び R^{20} は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1～6 のアルキル基、置換もしくは無置換のフェニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、 α^1 及び α^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無

50

置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換のビフェニルジイル基を表し、 A^1 及び A^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のカルバゾリル基、置換もしくは無置換のジベンゾチオフェニル基、又は置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基を表す。

【0085】

また、一般式 (G 5-2) 中、 R^{13} 、 $R^{15} \sim R^{17}$ 、 R^{19} 、及び R^{20} のいずれかが、フェニル基又はビフェニル基を表す場合、該フェニル基又は該ビフェニル基は、置換基として、炭素数 1～6 のアルキル基を有していても良い。

【0086】

また、一般式 (G 5-1) 及び一般式 (G 5-2) において、 α^1 及び α^2 は置換又は無置換の m-フェニレン基やメタ置換を含むビフェニルジイル基であることが、高い T 1 準位を有する上で好ましい。

10

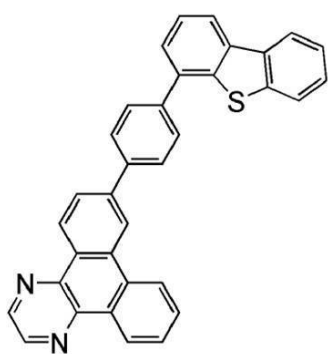
【0087】

一般式 (G 1-1) ～ (G 1-3)、(G 2-1) ～ (G 2-3)、(G 3-1) ～ (G 3-3)、(G 4-1) ～ (G 4-3)、(G 5-1)、及び (G 5-2) に示される有機化合物の具体例としては、構造式 (100) ～ 構造式 (131)、構造式 (200) ～ 構造式 (234)、構造式 (300) ～ 構造式 (340)、構造式 (400) ～ 構造式 (453)、構造式 (500) ～ 構造式 (537)、構造式 (600) ～ 構造式 (634)、構造式 (700) ～ 構造式 (726)、及び構造式 (800) ～ 構造式 (829) に示される有機化合物を挙げることができる。但し、本発明はこれらに限定されない。

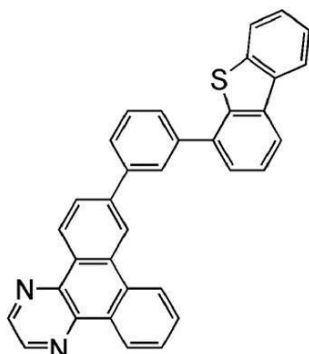
【0088】

20

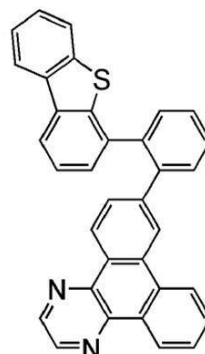
【化 1 5】



(100)

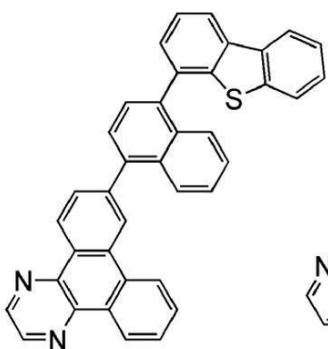


(101)

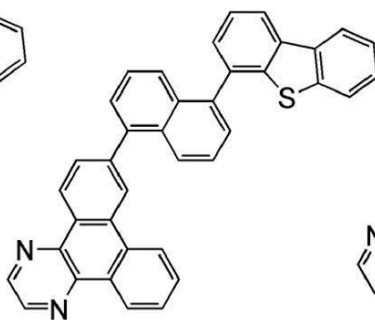


(102)

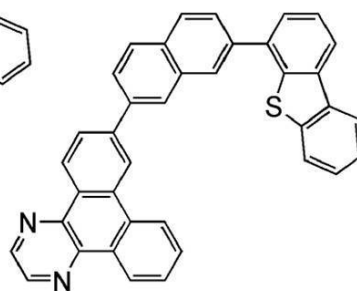
10



(103)

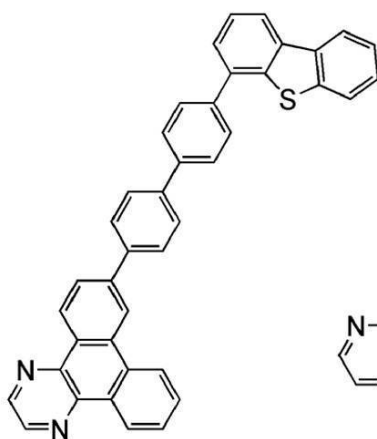


(104)

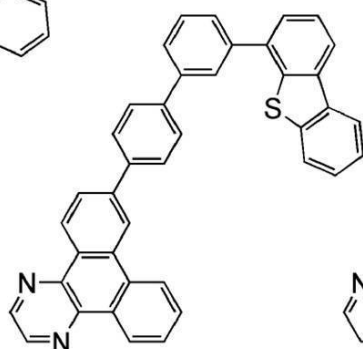


(105)

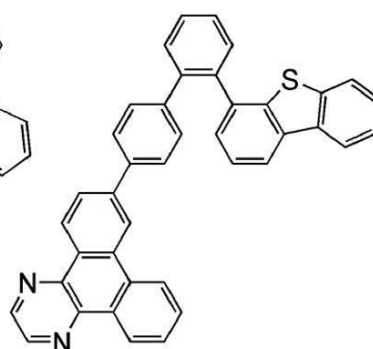
20



(106)



(107)

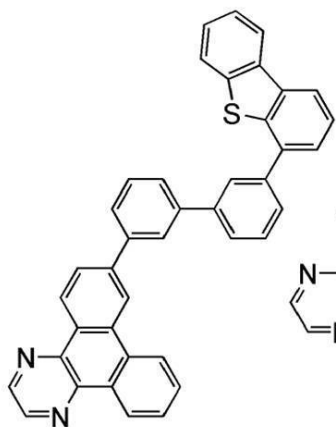


(108)

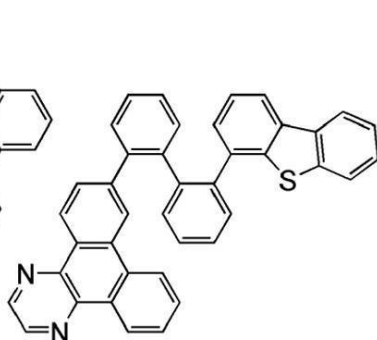
30

【 0 0 8 9 】

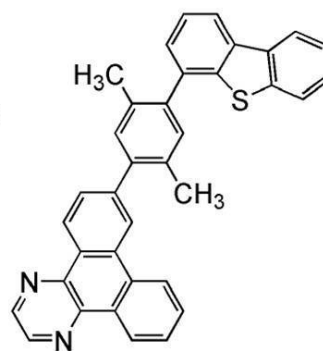
【化 1 6】



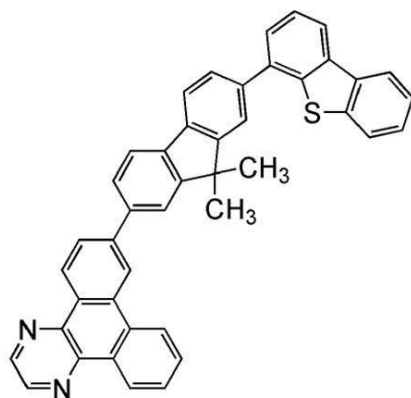
(109)



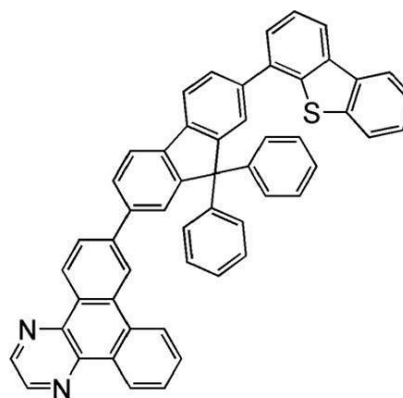
(110)



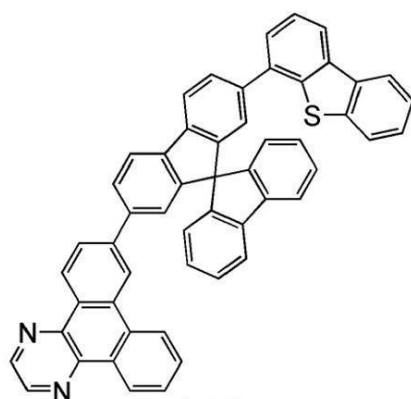
(111)



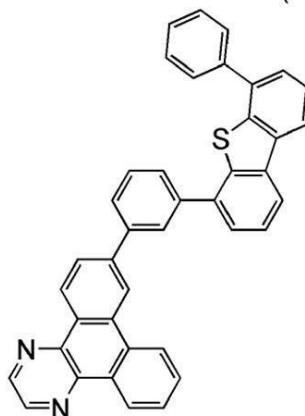
(112)



(113)



(114)



(115)

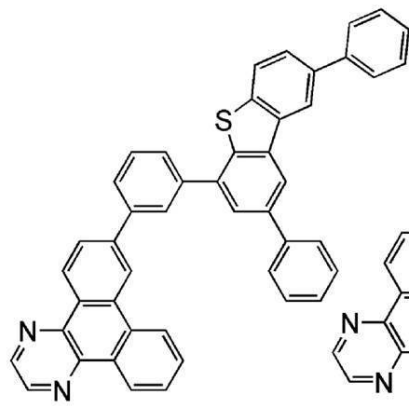
【 0 0 9 0 】

10

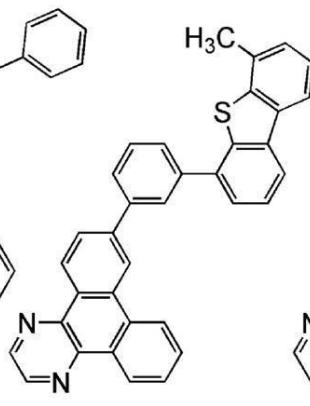
20

30

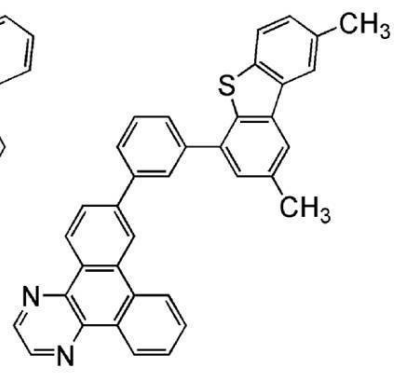
【化 1 7】



(116)

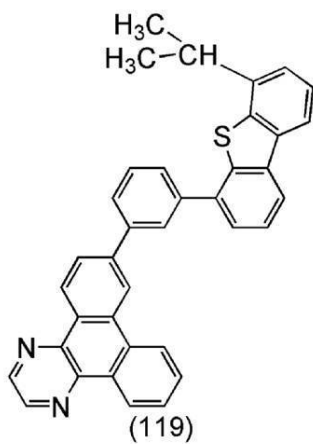


(117)

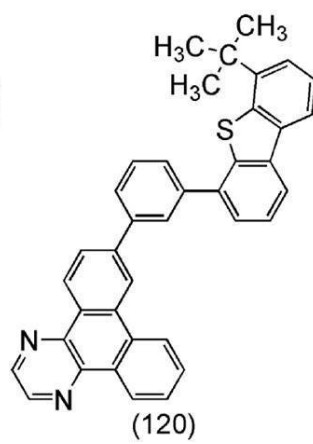


(118)

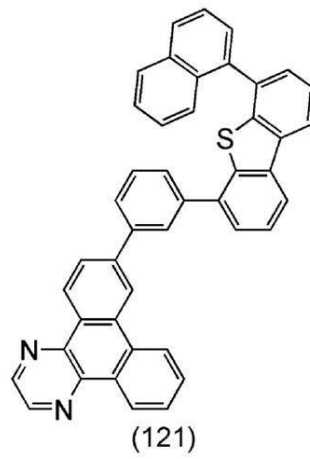
10



(119)



(120)

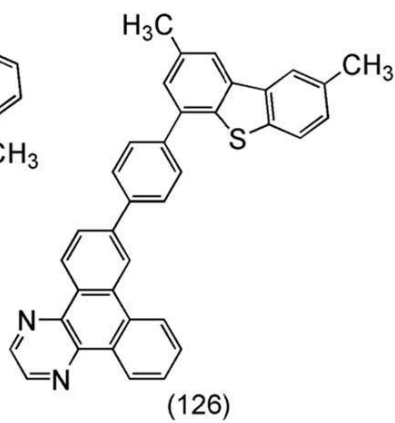
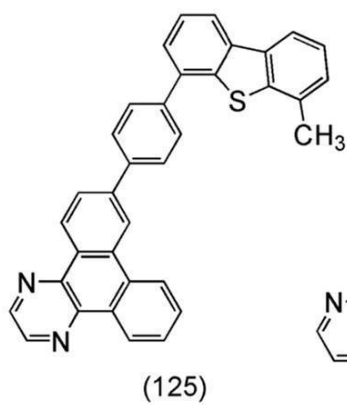
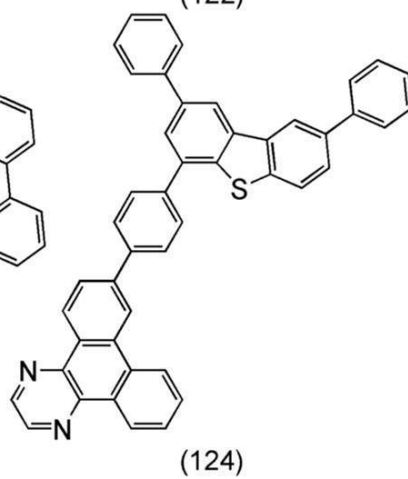
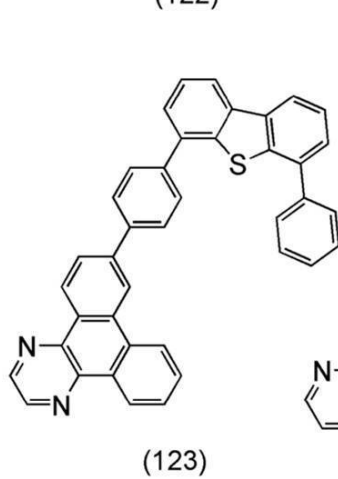
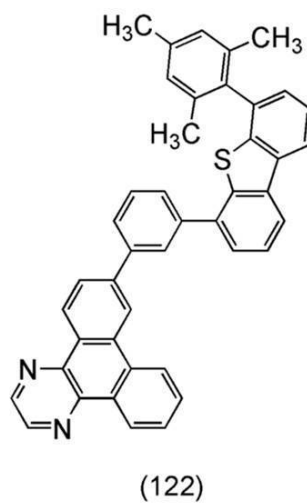
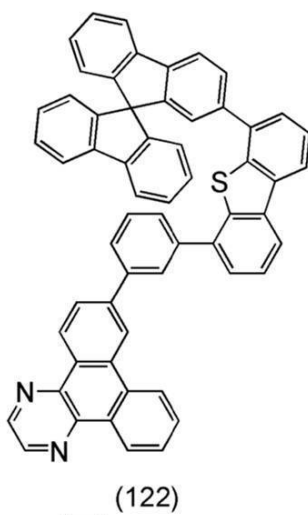
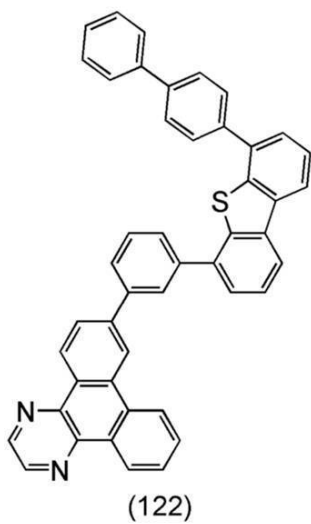


(121)

20

【 0 0 9 1 】

【化 1 8】



【 0 0 9 2 】

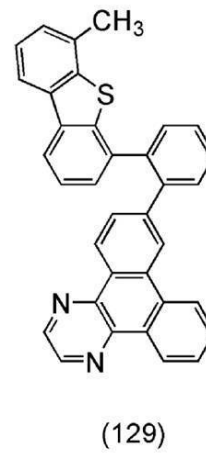
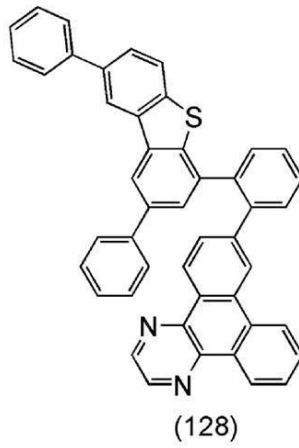
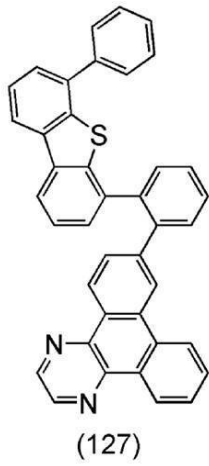
10

20

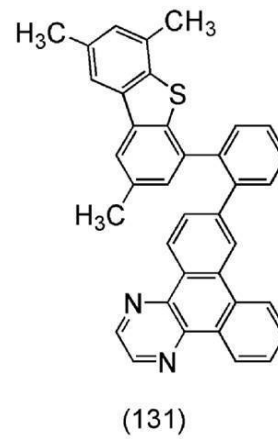
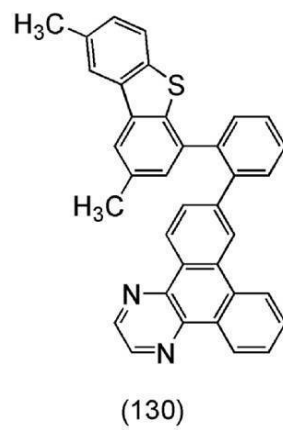
30

40

【化 1 9】



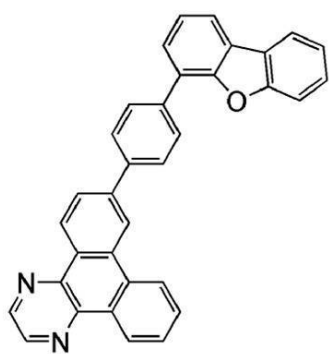
10



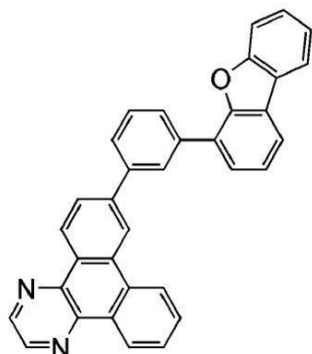
20

【 0 0 9 3 】

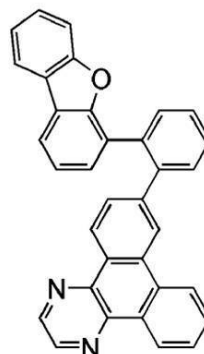
【化 2 0】



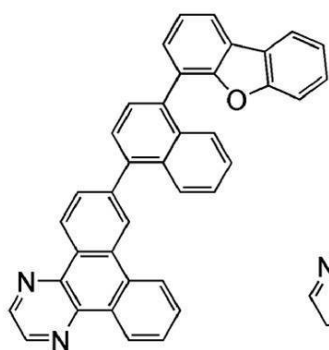
(200)



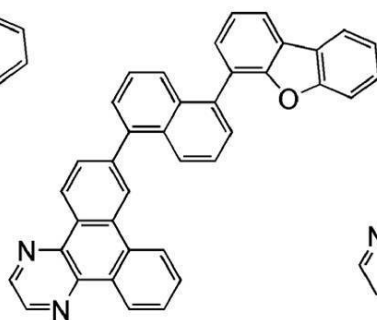
(201)



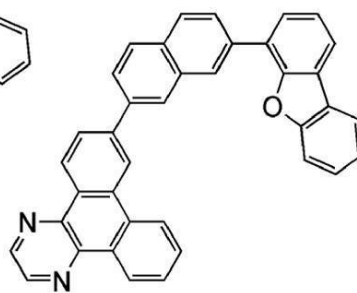
(202)



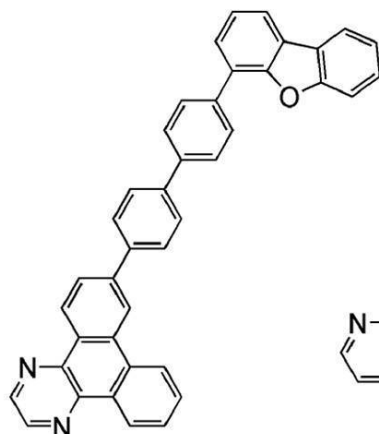
(203)



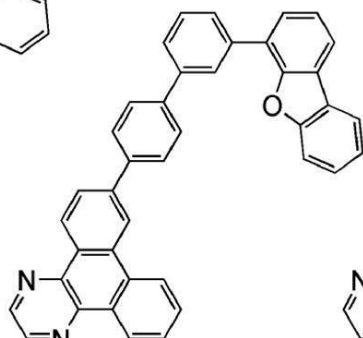
(204)



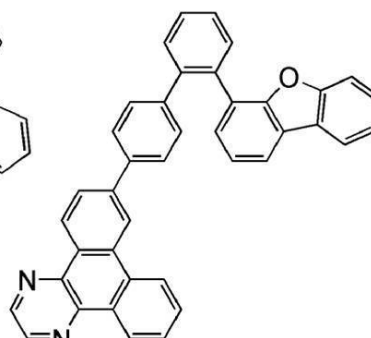
(205)



(206)



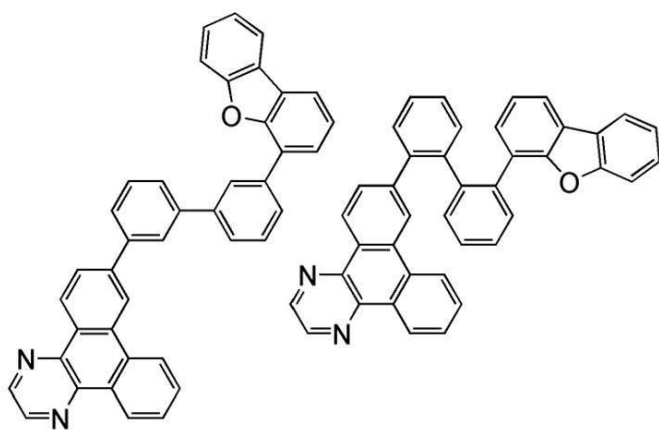
(207)



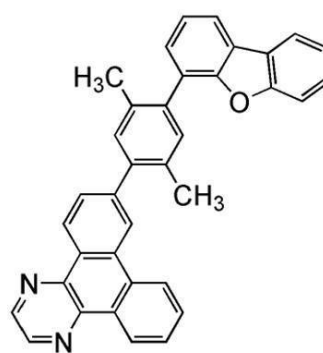
(208)

【 0 0 9 4】

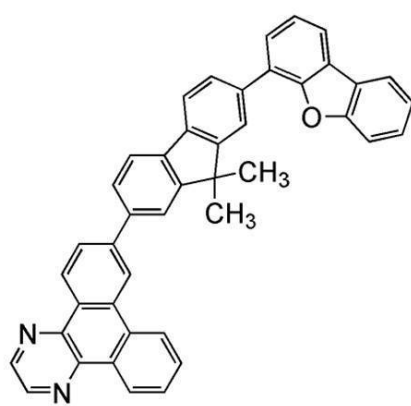
【化 2 1】



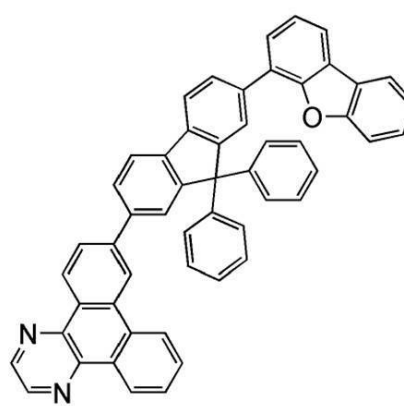
(210)



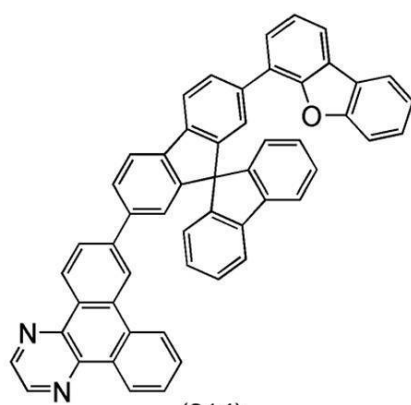
10



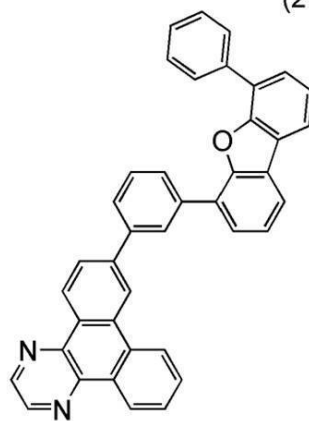
(213)



20



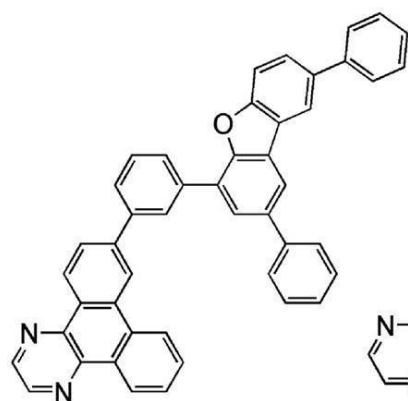
(215)



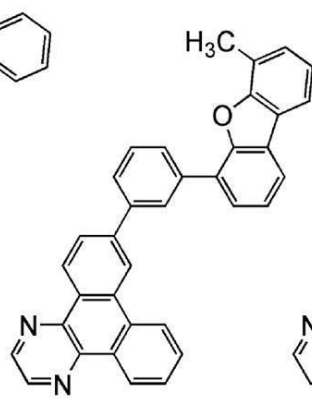
30

【 0 0 9 5】

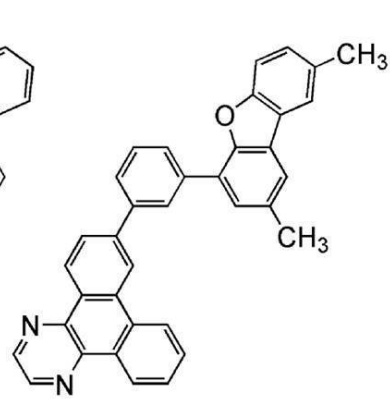
【化 2 2】



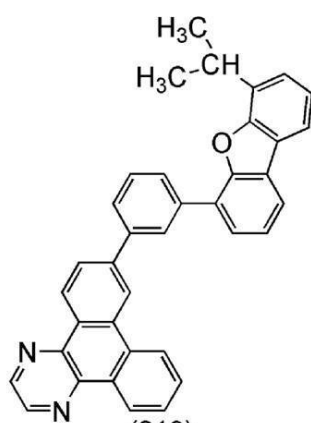
(216)



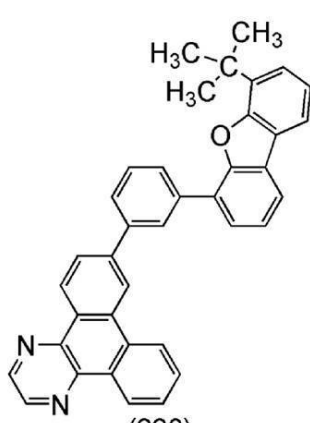
(217)



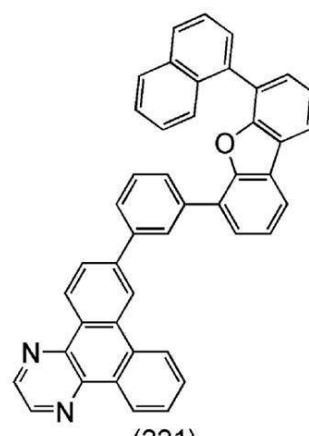
(218)



(219)



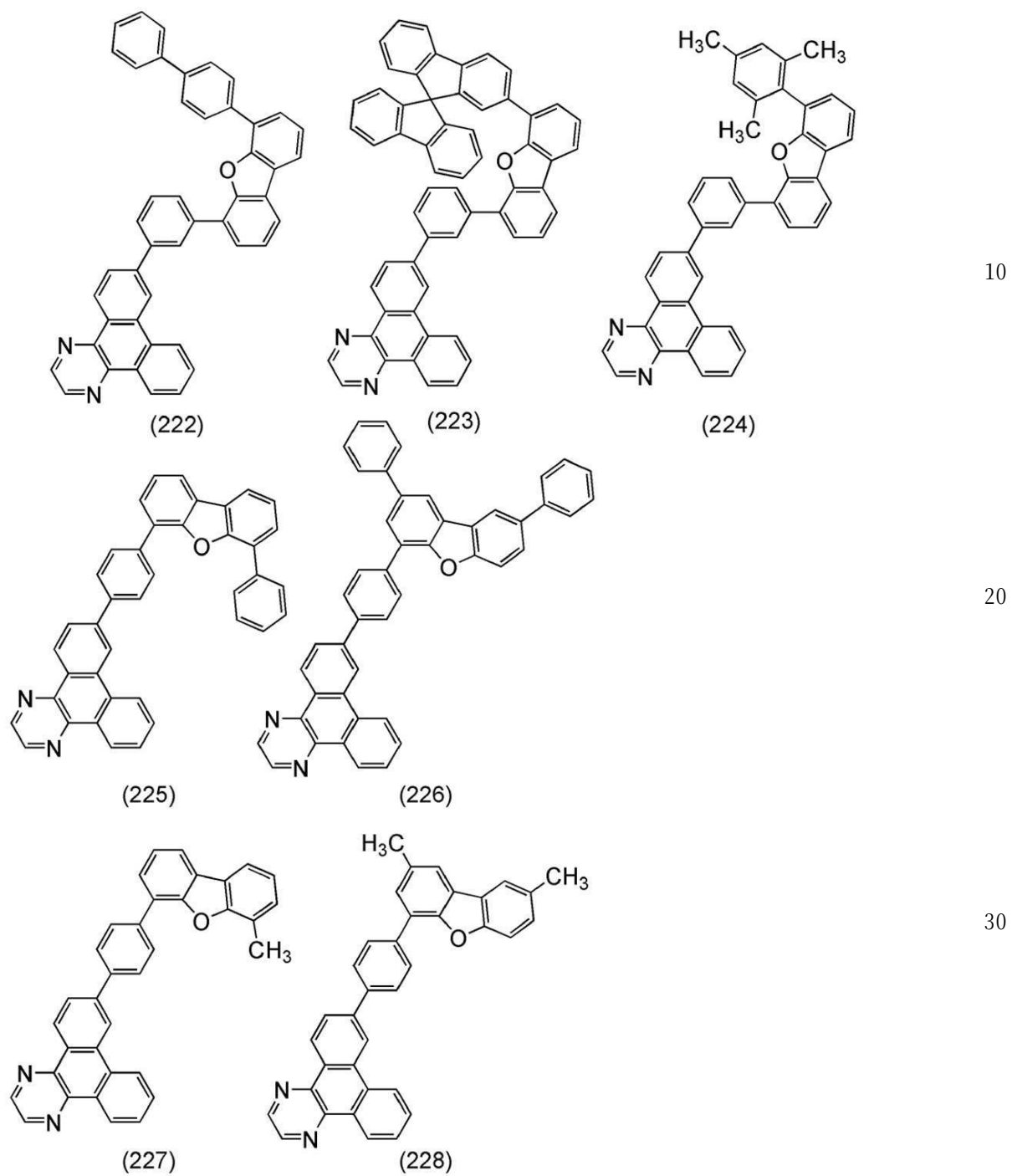
(220)



(221)

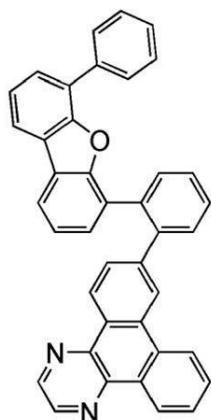
【 0 0 9 6】

【化 2 3】

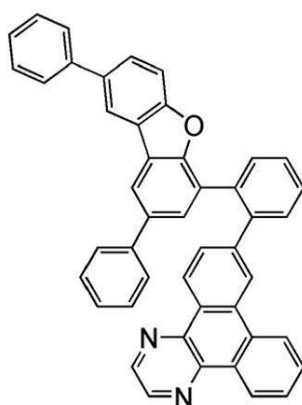


【 0 0 9 7 】

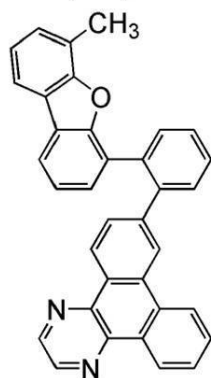
【化 2 4】



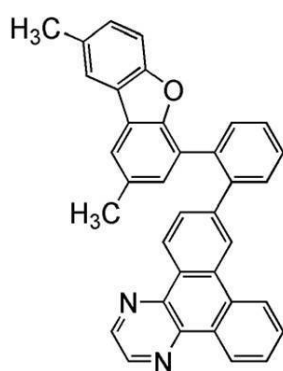
(229)



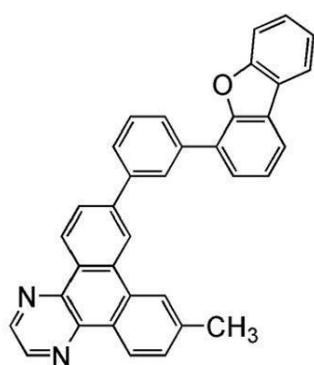
(230)



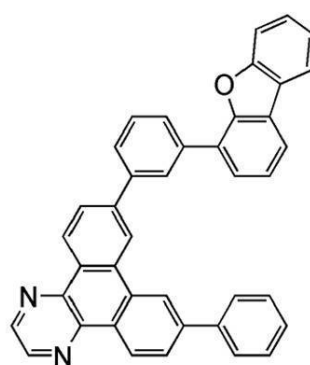
(231)



(232)



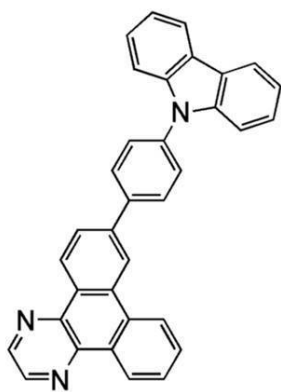
(233)



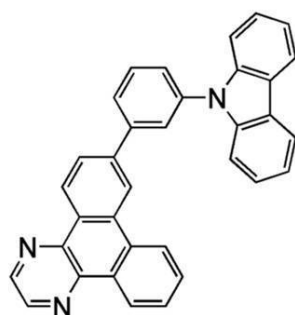
(234)

【 0 0 9 8 】

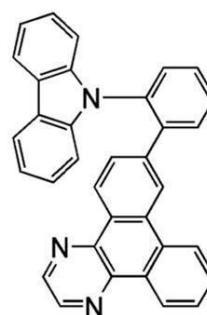
【化 2 5】



(300)

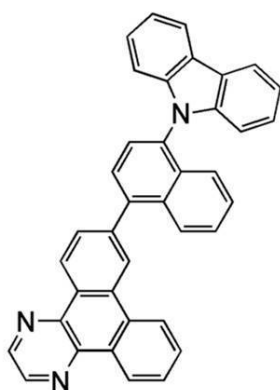


(301)

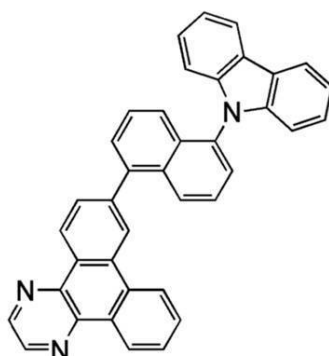


(302)

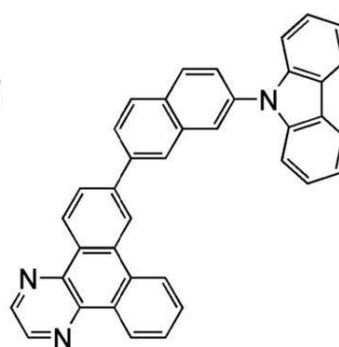
10



(303)

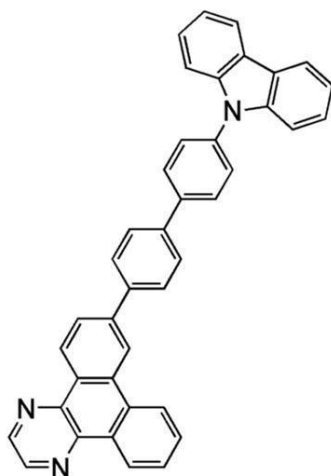


(304)

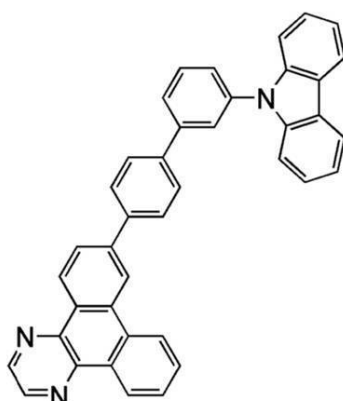


(305)

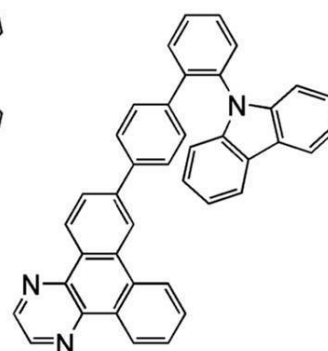
20



(306)



(307)



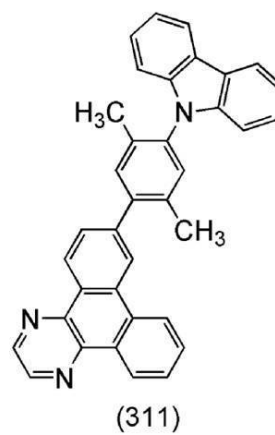
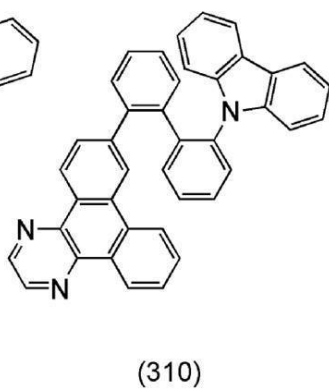
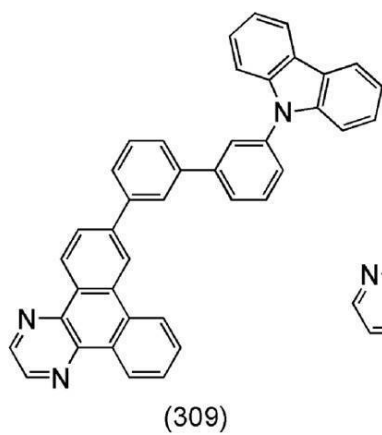
(308)

30

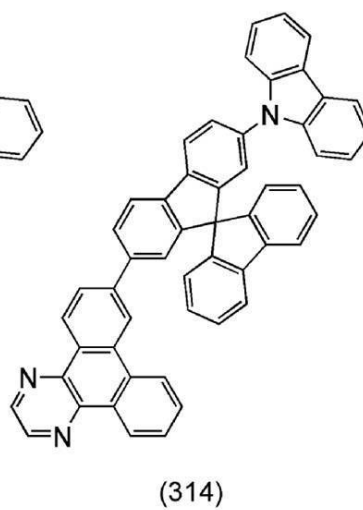
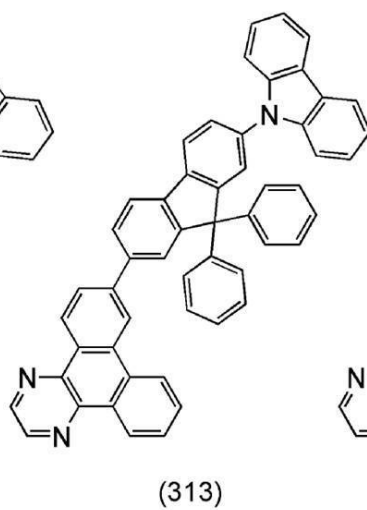
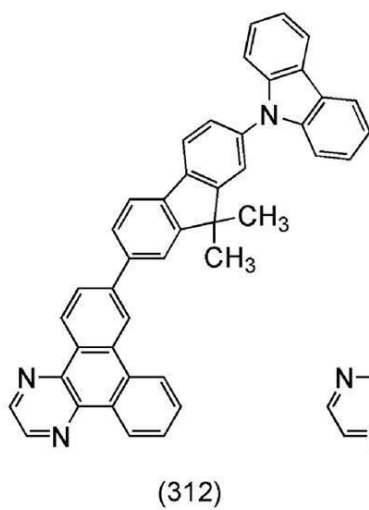
【 0 0 9 9 】

40

【化 2 6】



10

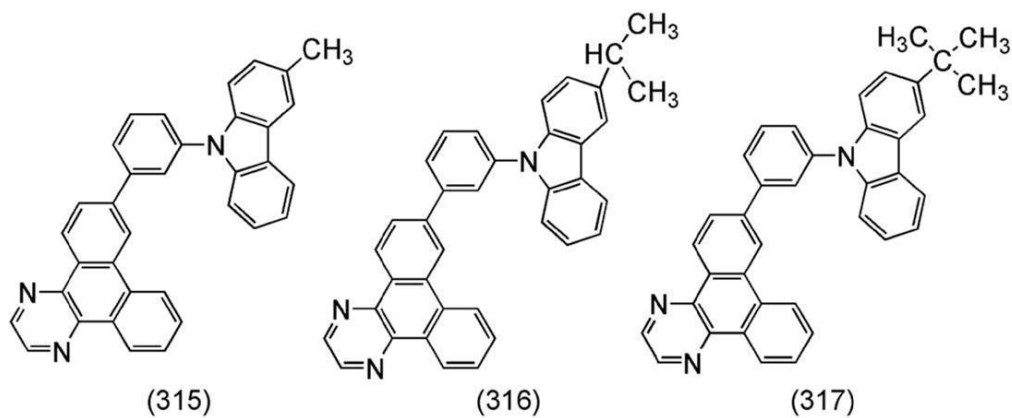


20

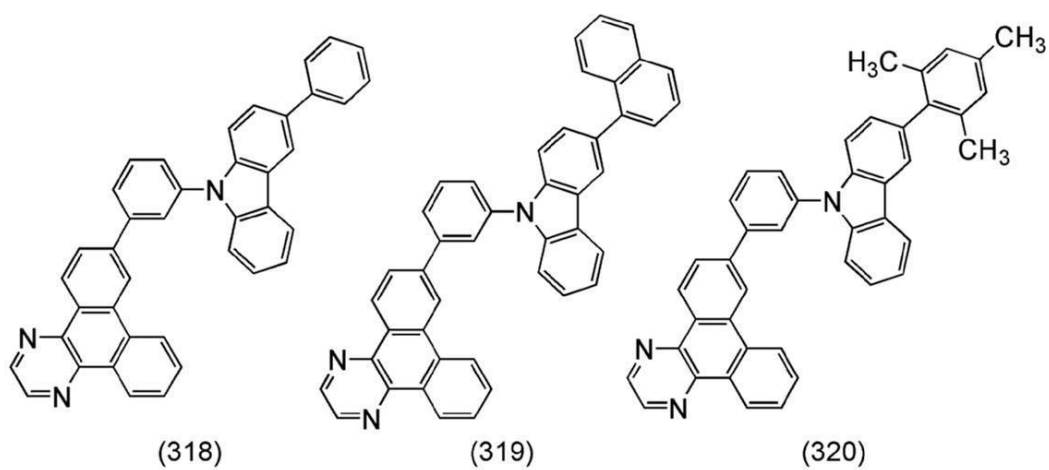
【 0 1 0 0 】

30

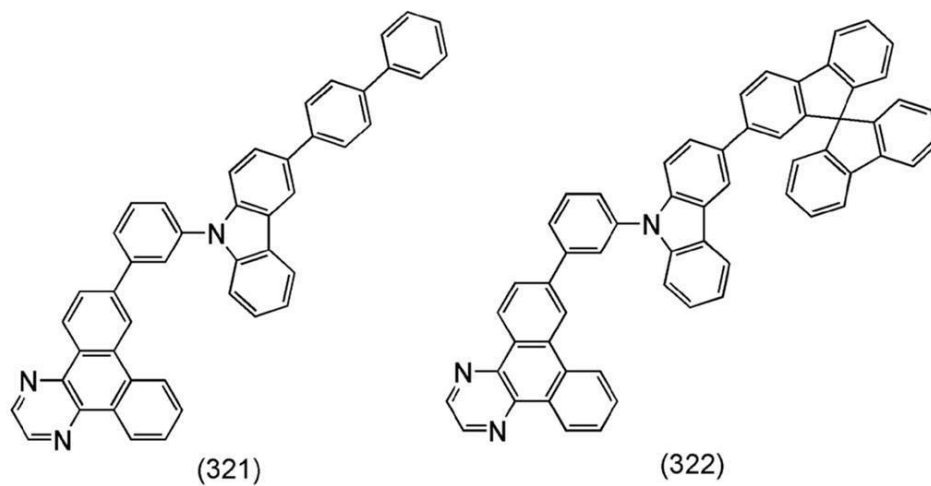
【化 2 7】



10



20



30

【 0 1 0 1】

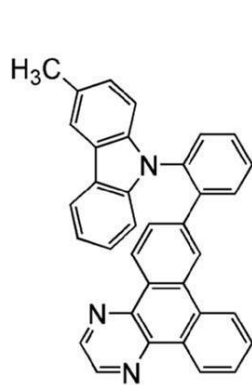
40

10

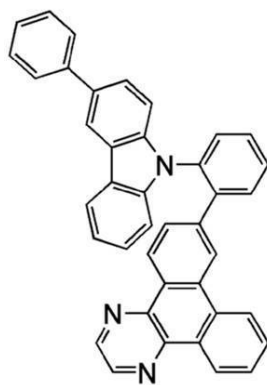


【 0 1 0 2 】

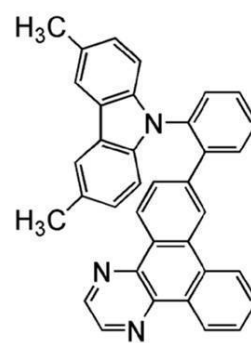
【化 2 9】



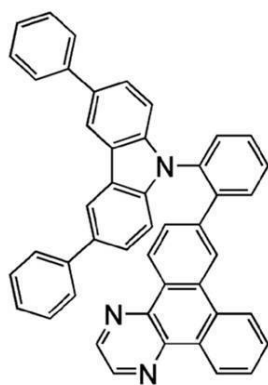
(331)



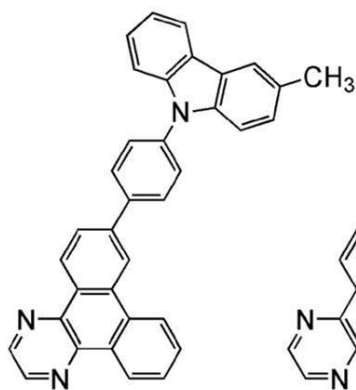
(332)



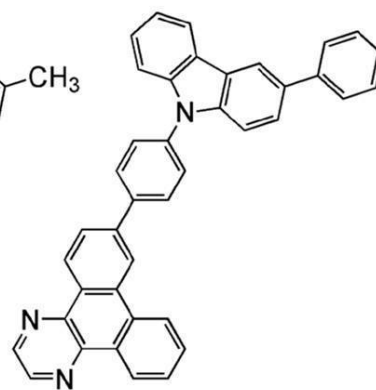
(333)



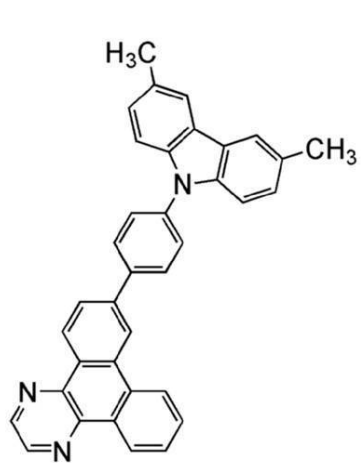
(334)



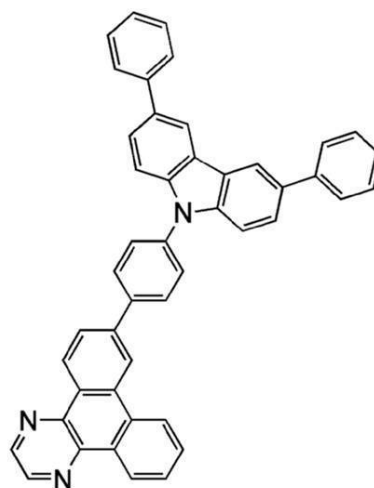
(335)



(336)



(337)



(338)

【 0 1 0 3】

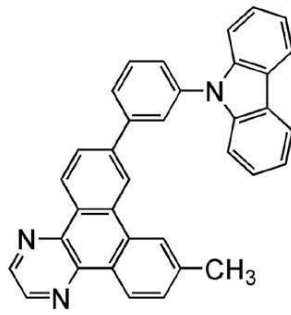
10

20

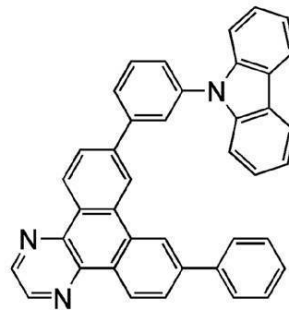
30

40

【化 3 0】



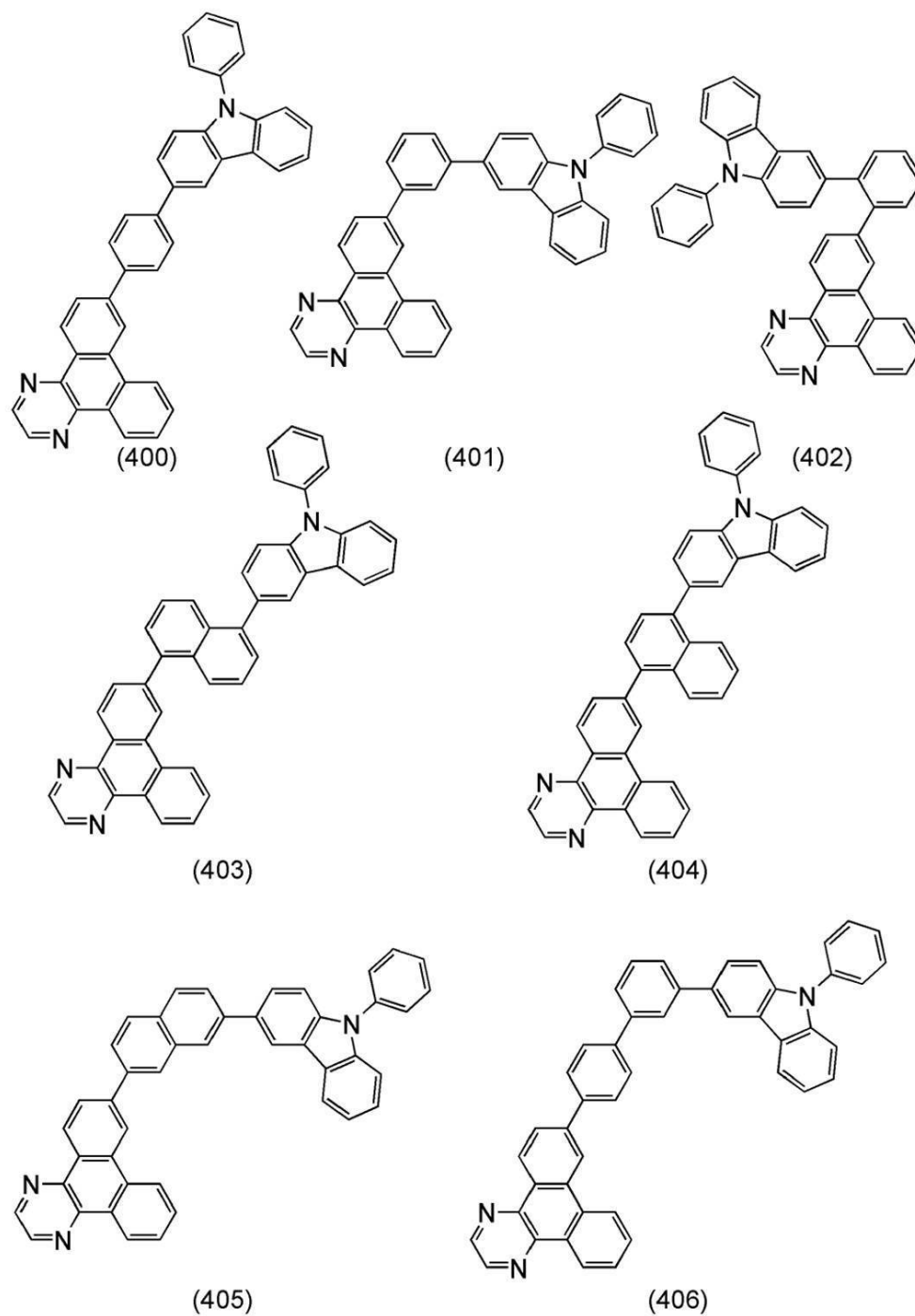
(339)



(340)

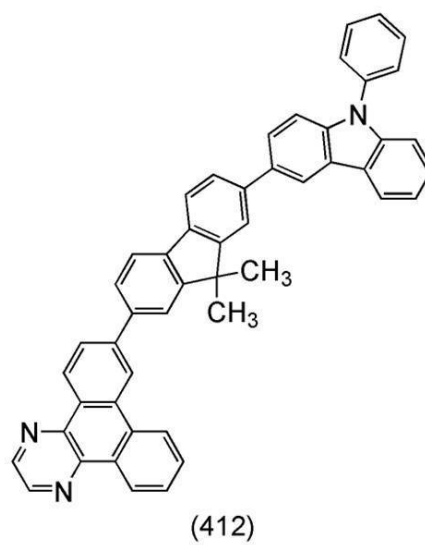
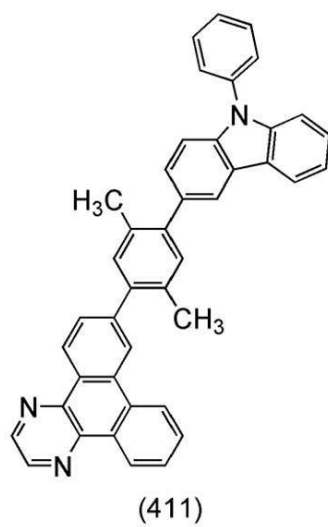
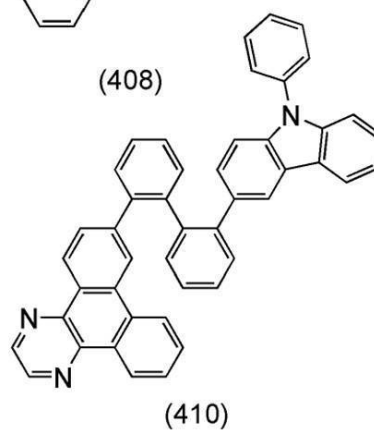
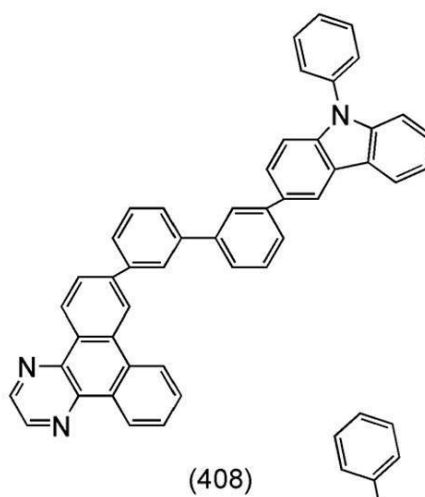
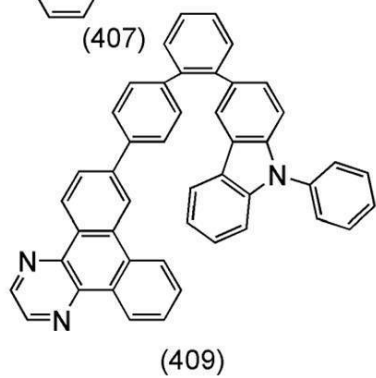
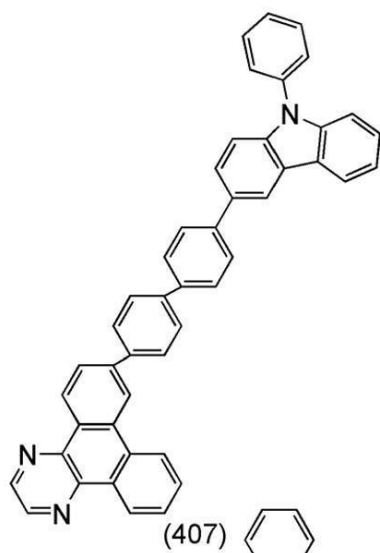
【 0 1 0 4】

【化 3 1】



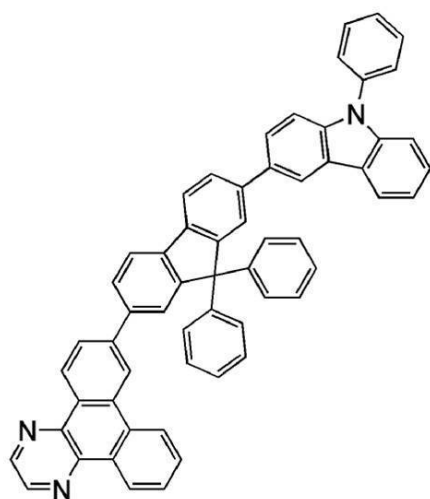
【 0 1 0 5】

【化 3 2】

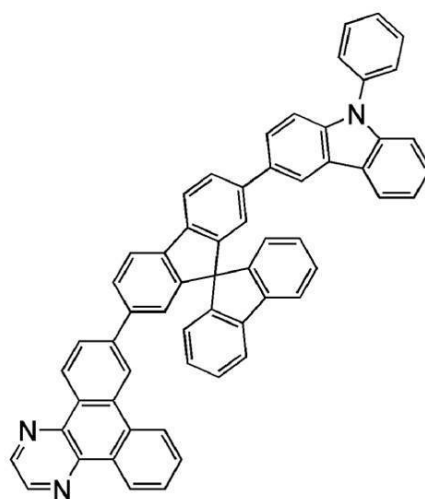


【 0 1 0 6】

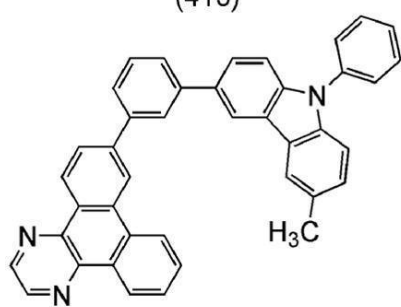
【化 3 3】



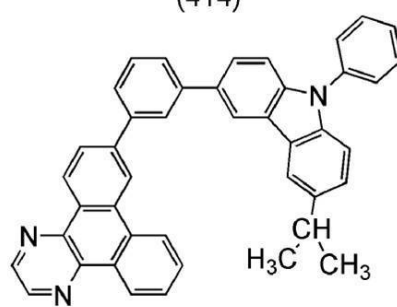
(413)



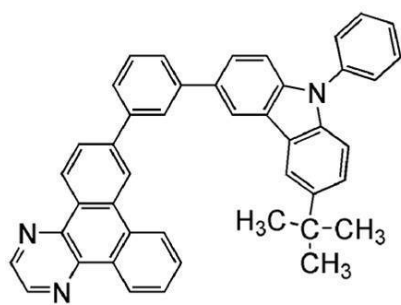
(414)



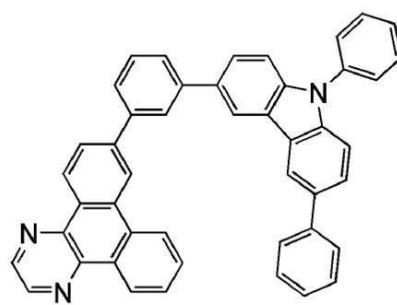
(415)



(416)



(417)



(418)

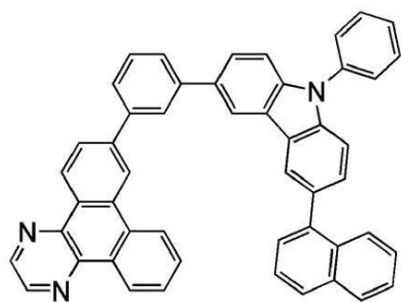
【 0 1 0 7 】

10

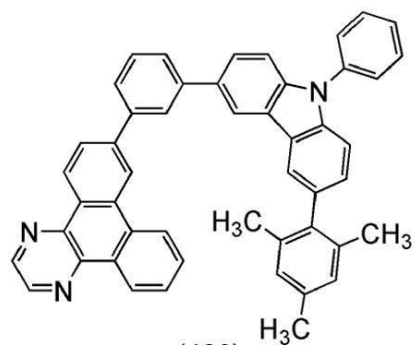
20

30

【化 3 4】

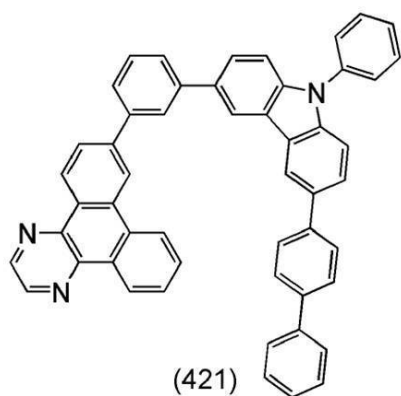


(419)

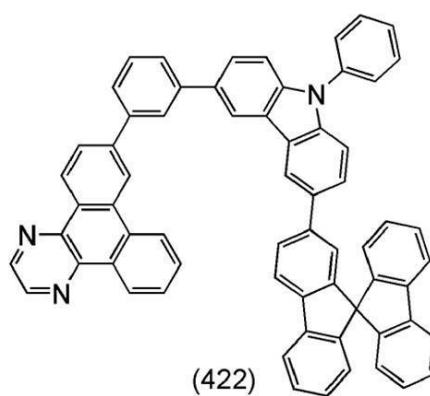


(420)

10

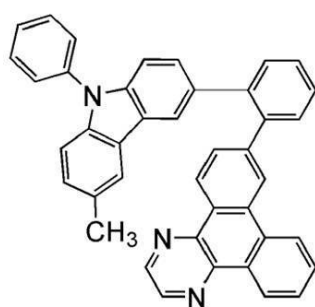


(421)

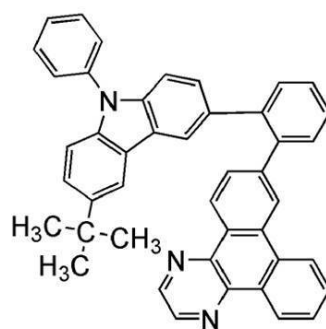


(422)

20



(423)

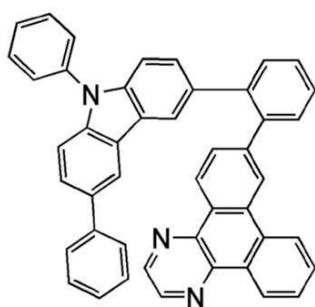


(424)

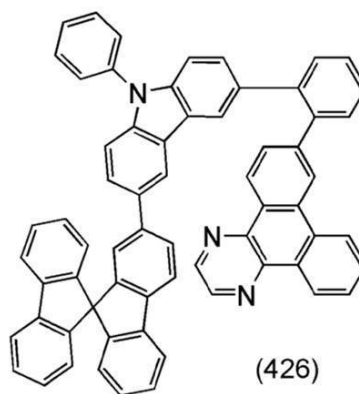
30

【 0 1 0 8】

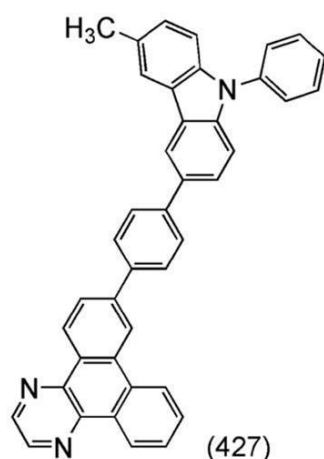
【化 3 5】



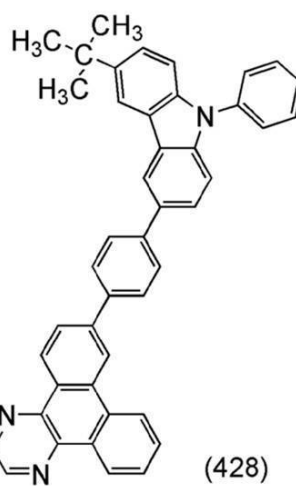
(425)



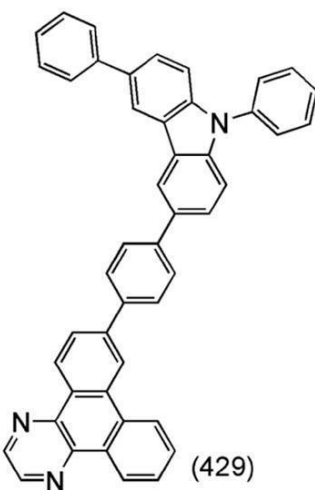
(426)



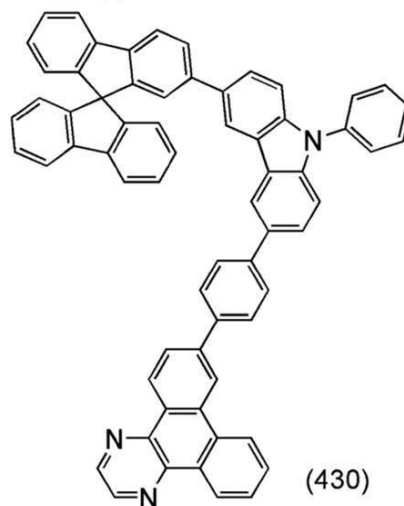
(427)



(428)



(429)



(430)

【 0 1 0 9】

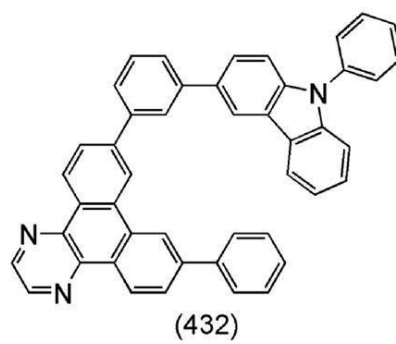
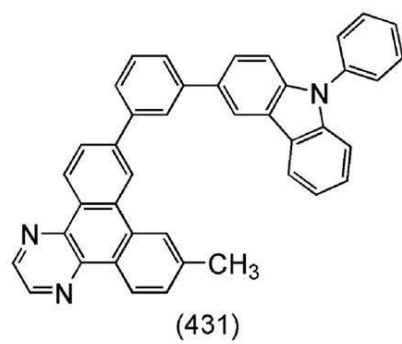
10

20

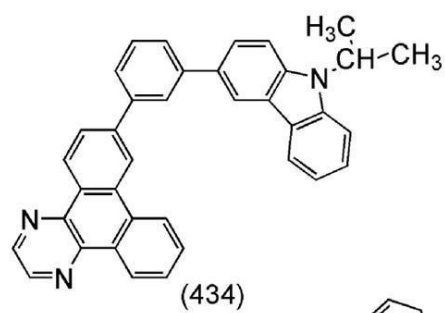
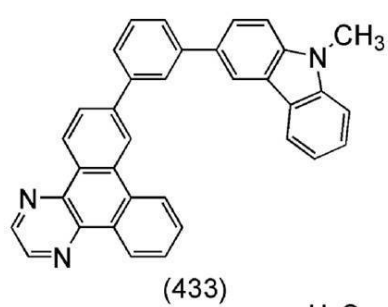
30

40

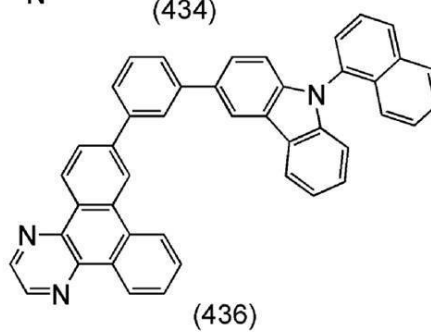
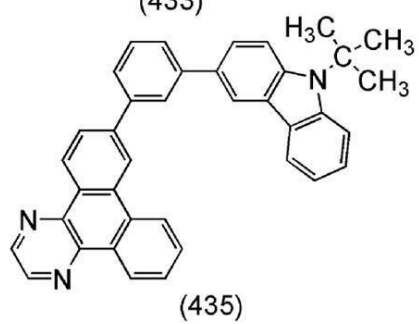
【化 3 6】



10



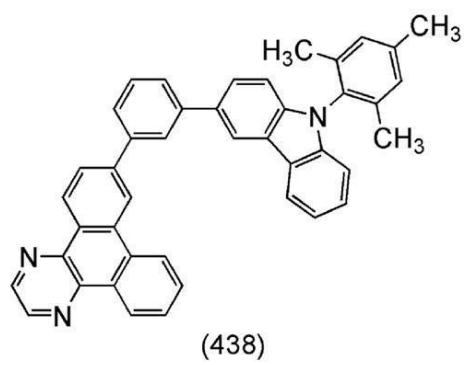
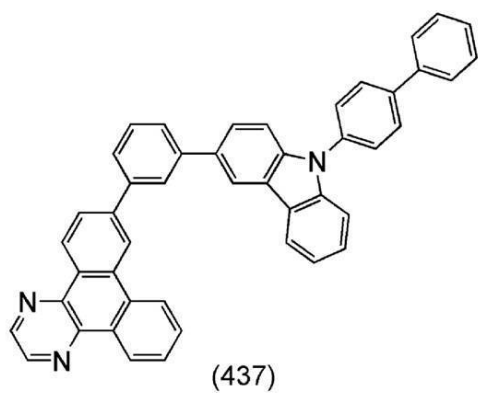
20



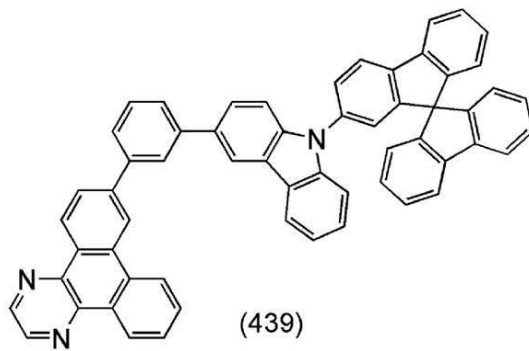
【 0 1 1 0 】

30

【化 3 7】



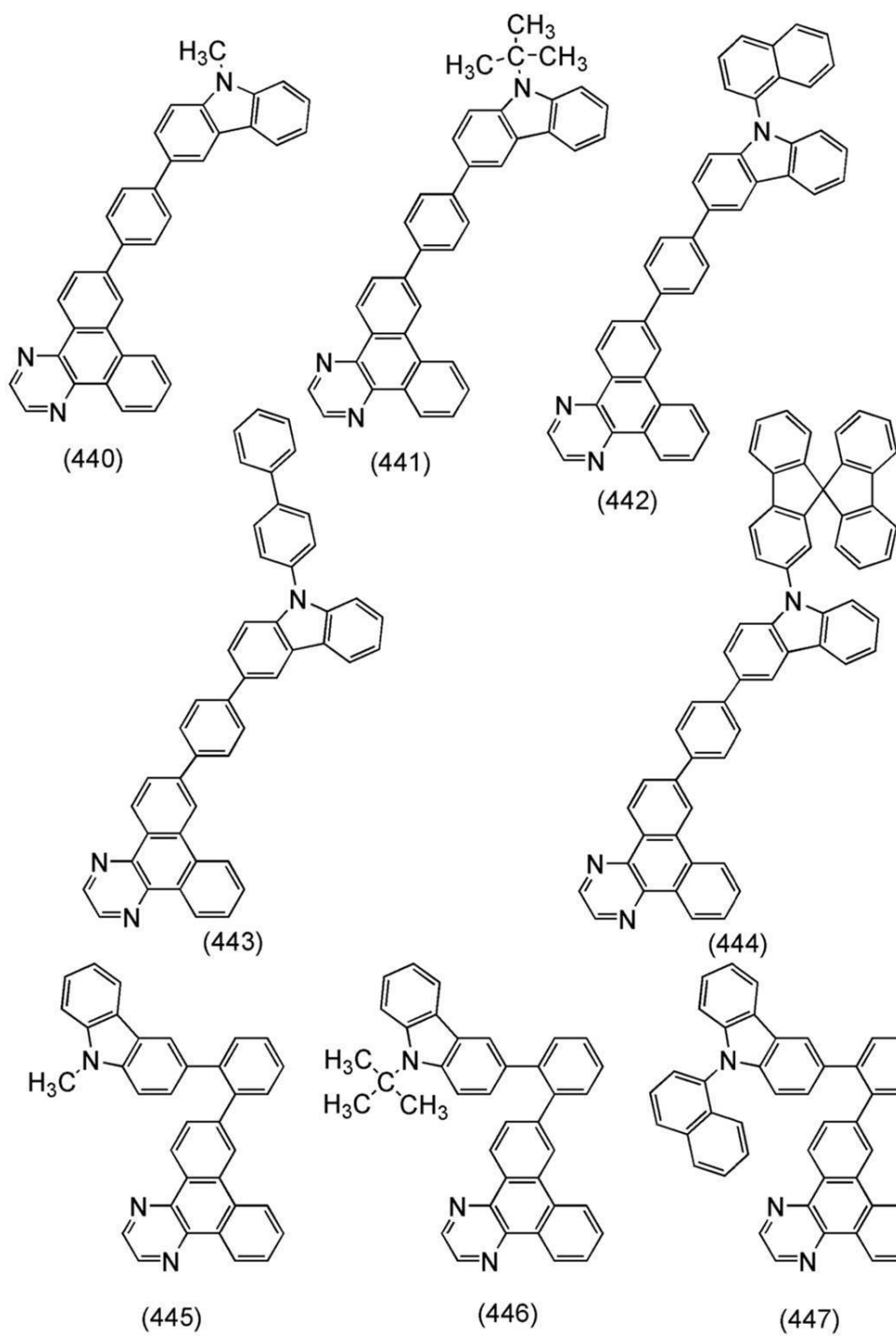
10



20

【 0 1 1 1 】

【化 3 8】



【 0 1 1 2】

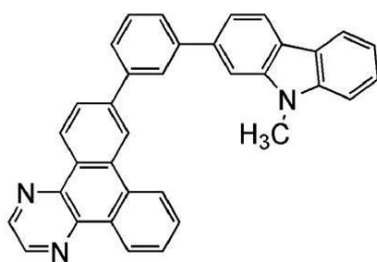
10

20

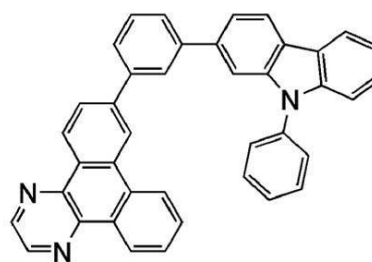
30

40

【化 3 9】

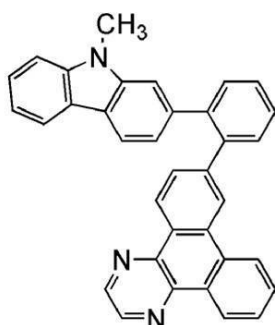


(448)

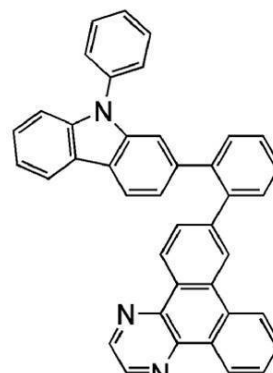


(449)

10

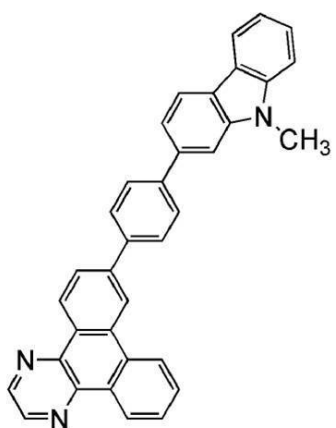


(450)

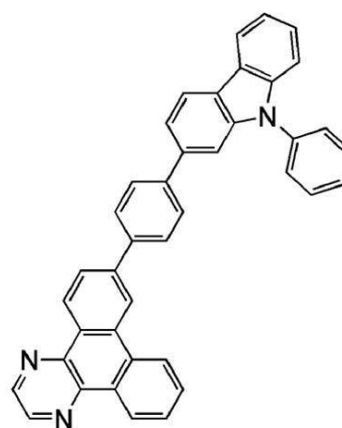


(451)

20



(452)

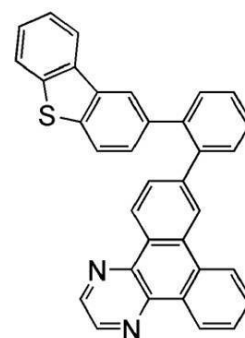
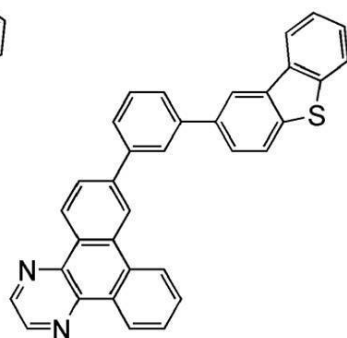
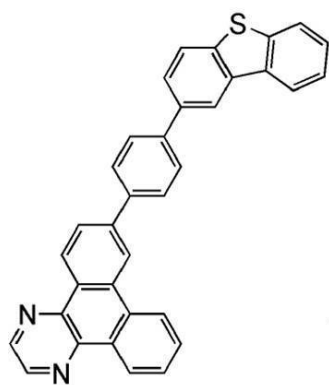


(453)

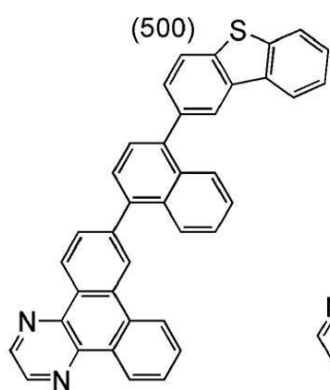
30

【 0 1 1 3 】

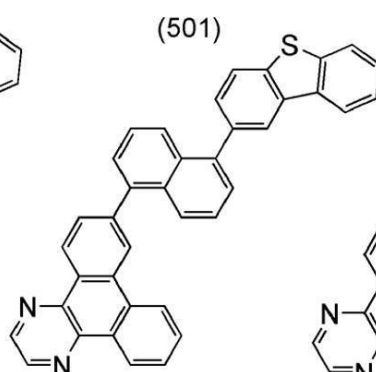
【化 4 0】



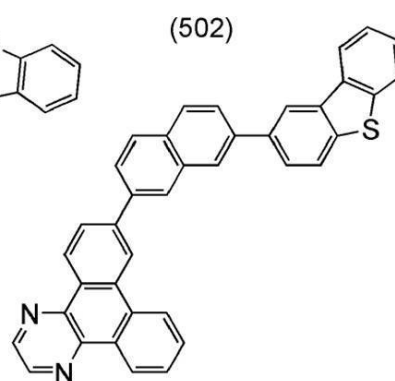
10



(500)

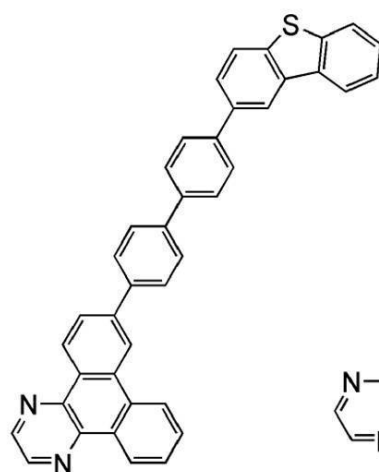


(501)

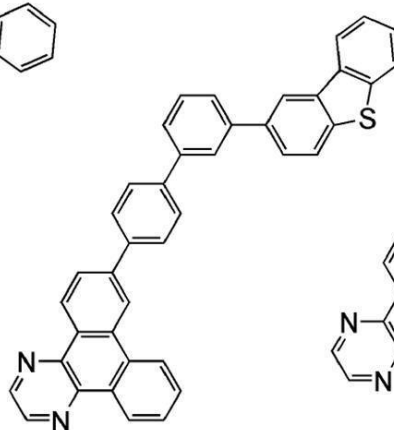


(502)

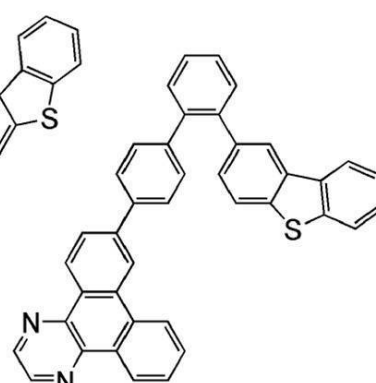
20



(503)



(504)

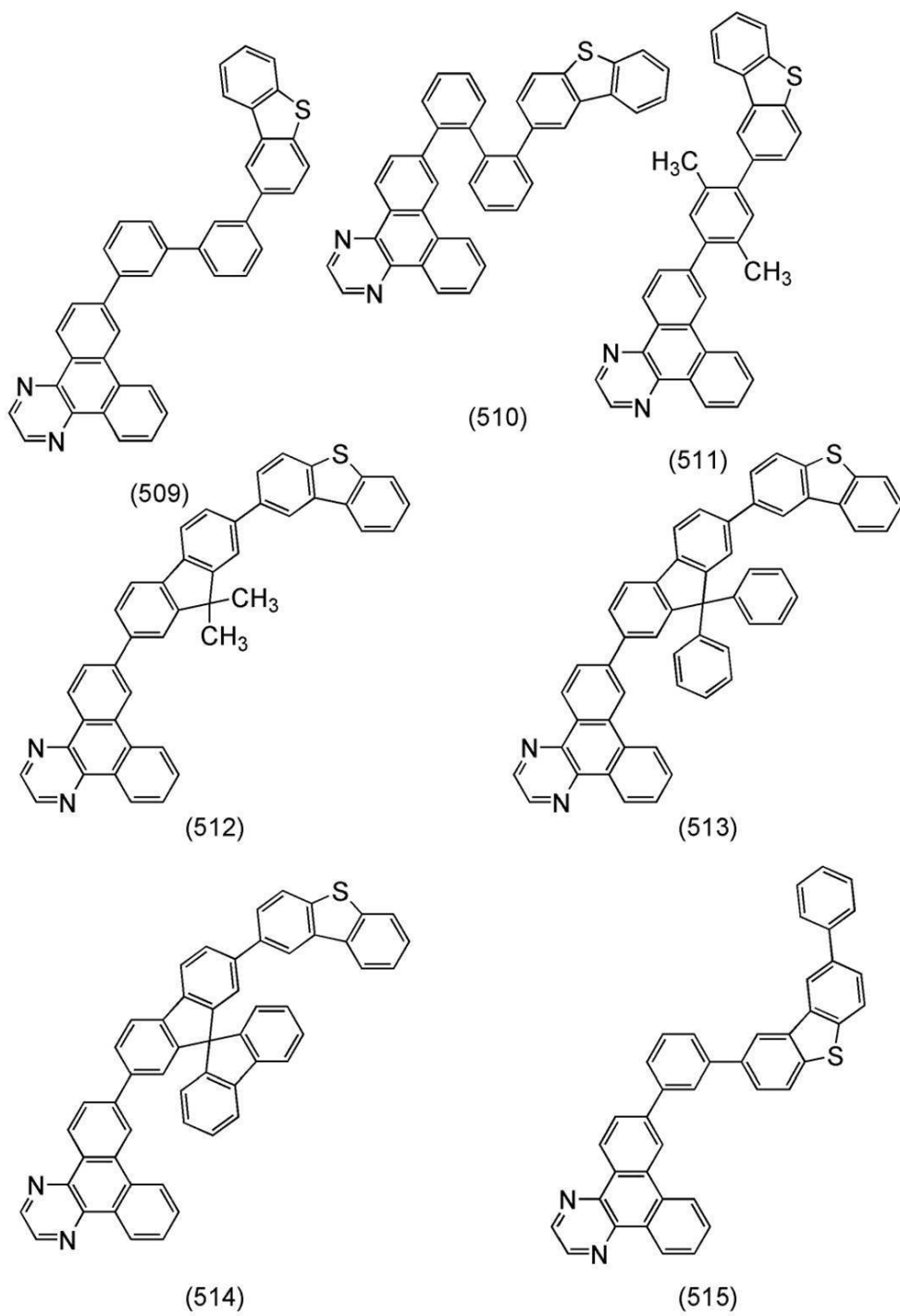


(505)

30

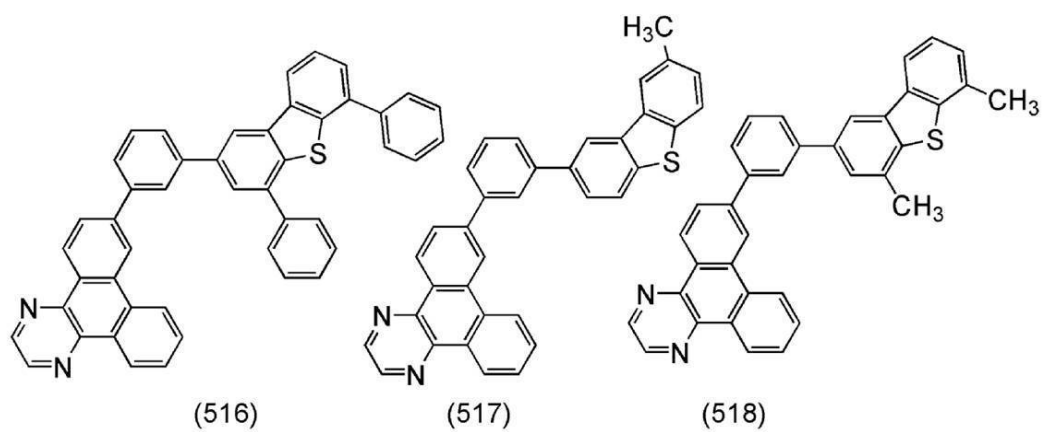
【 0 1 1 4】

【化 4 1】

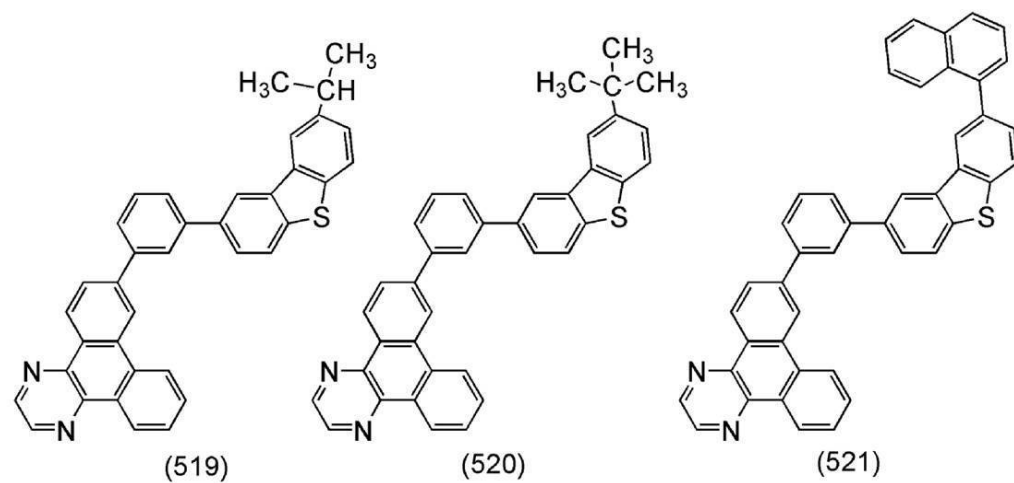


【 0 1 1 5】

【化 4 2】



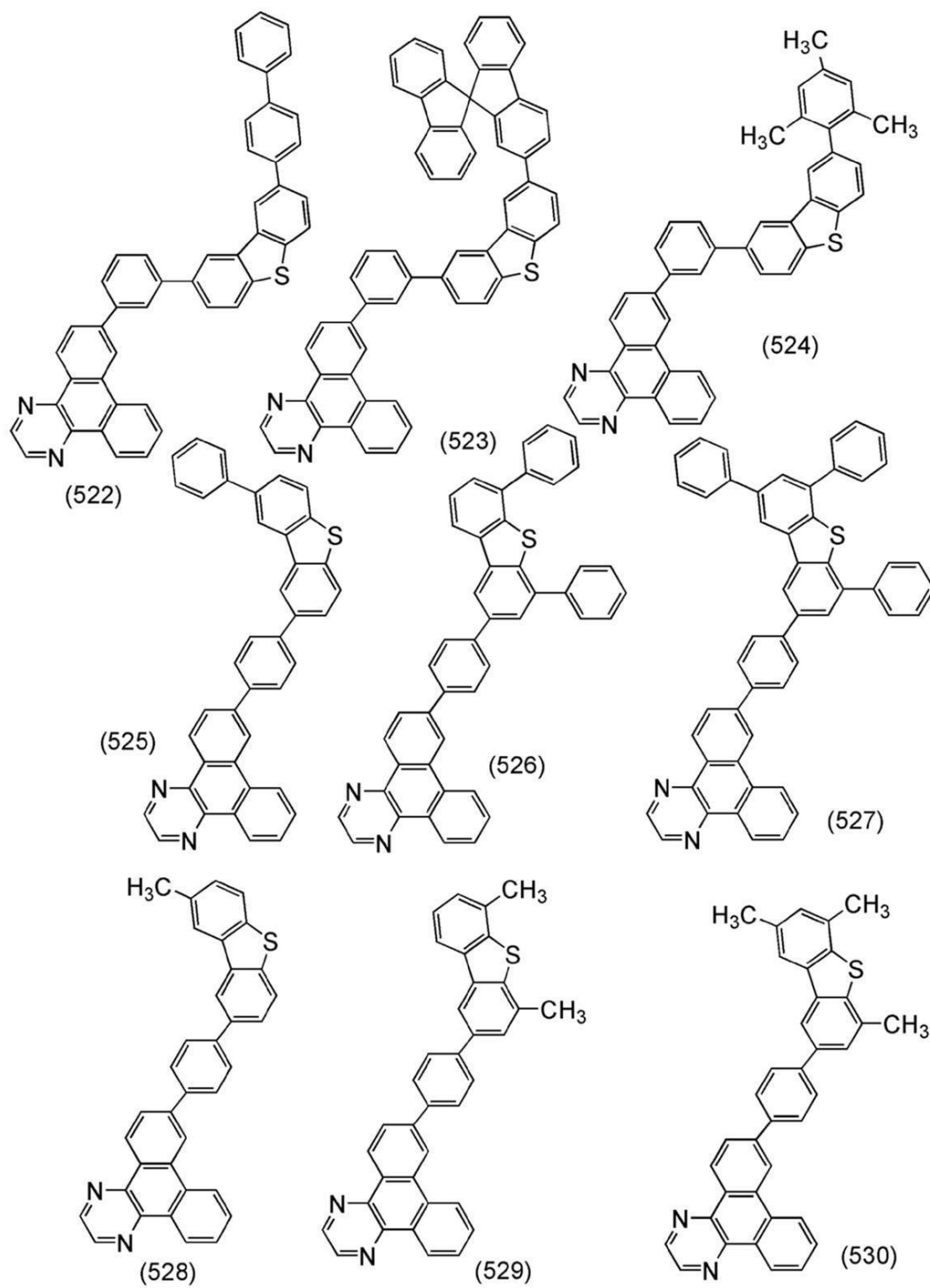
10



20

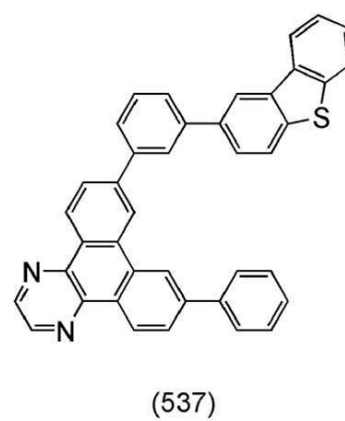
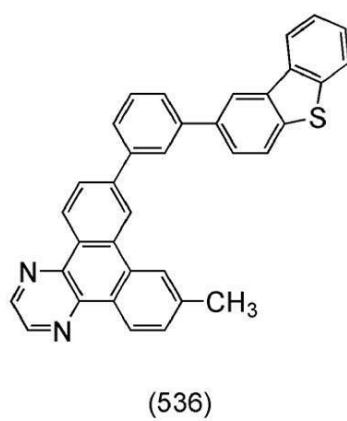
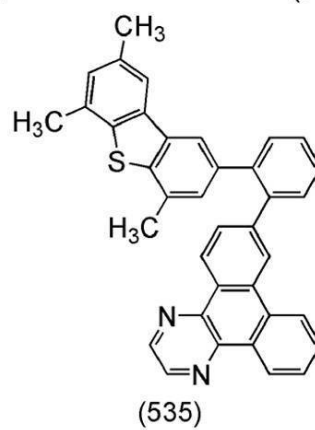
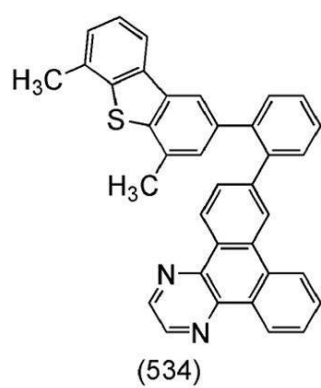
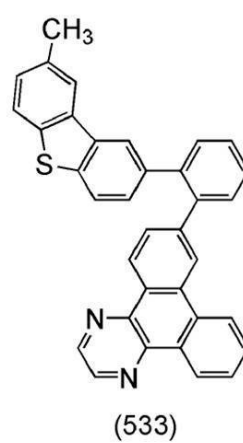
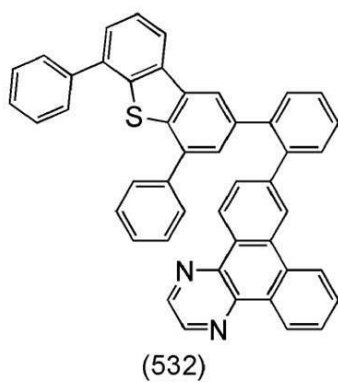
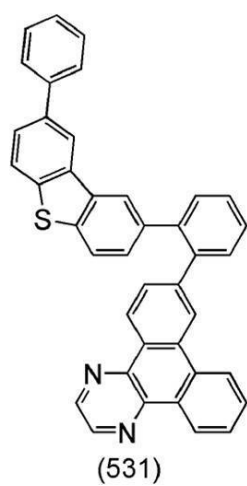
【 0 1 1 6】

【化 4 3】



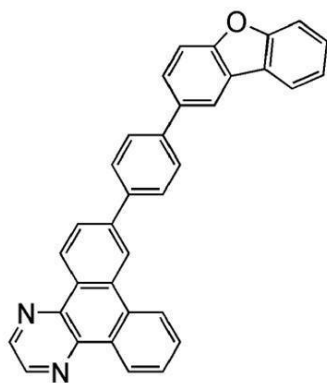
【 0 1 1 7】

【化 4 4】

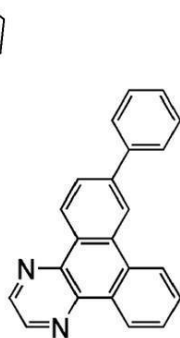


【 0 1 1 8】

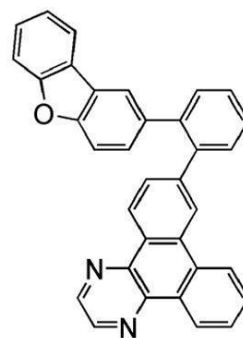
【化 4 5】



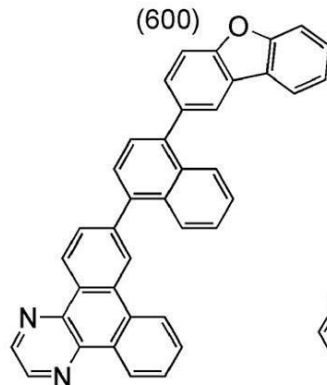
(600)



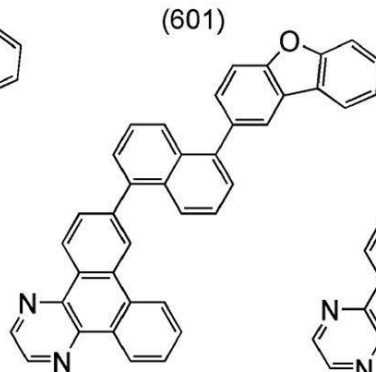
(601)



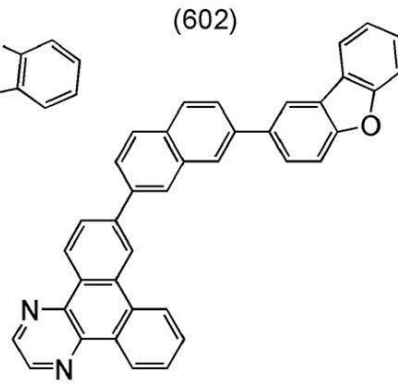
(602)



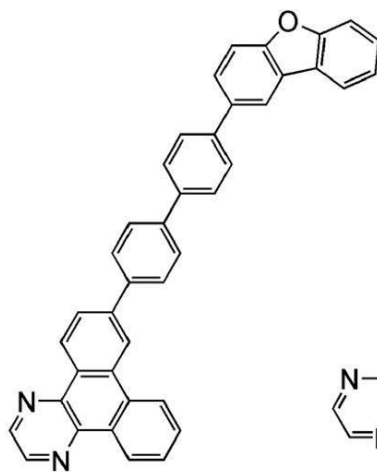
(603)



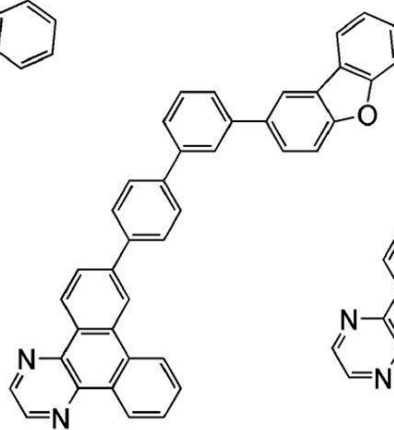
(604)



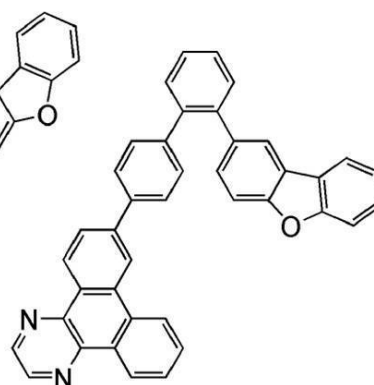
(605)



(606)



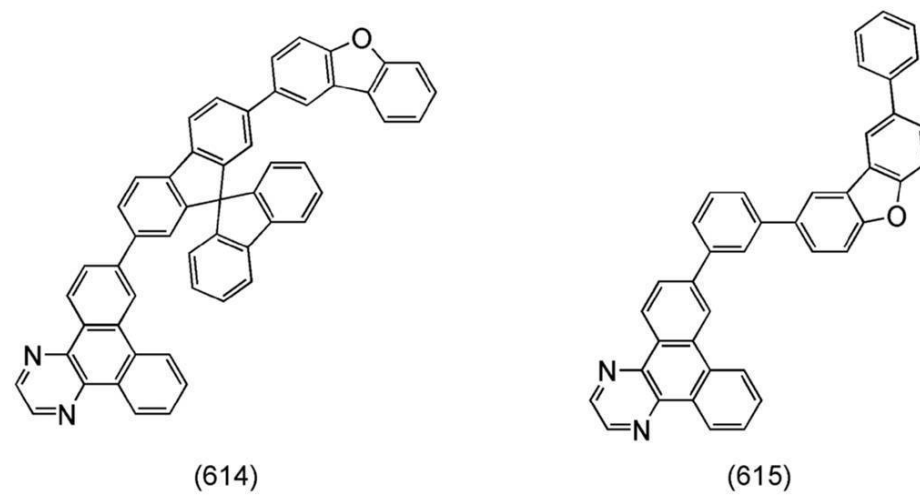
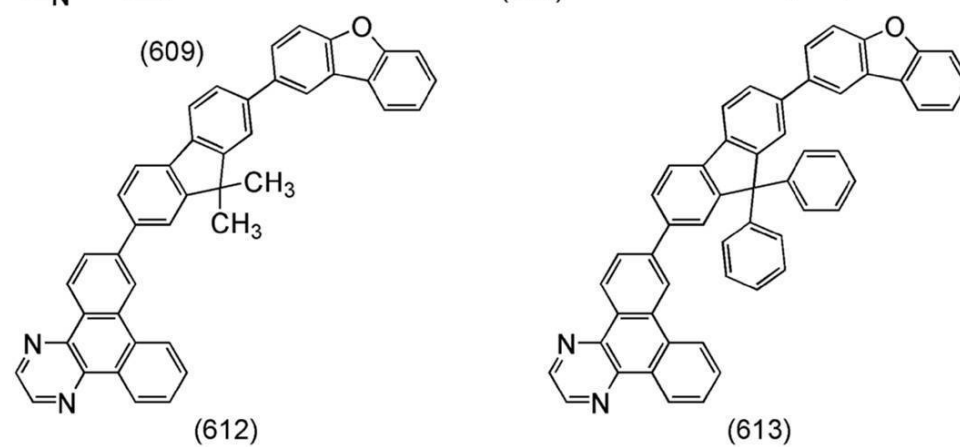
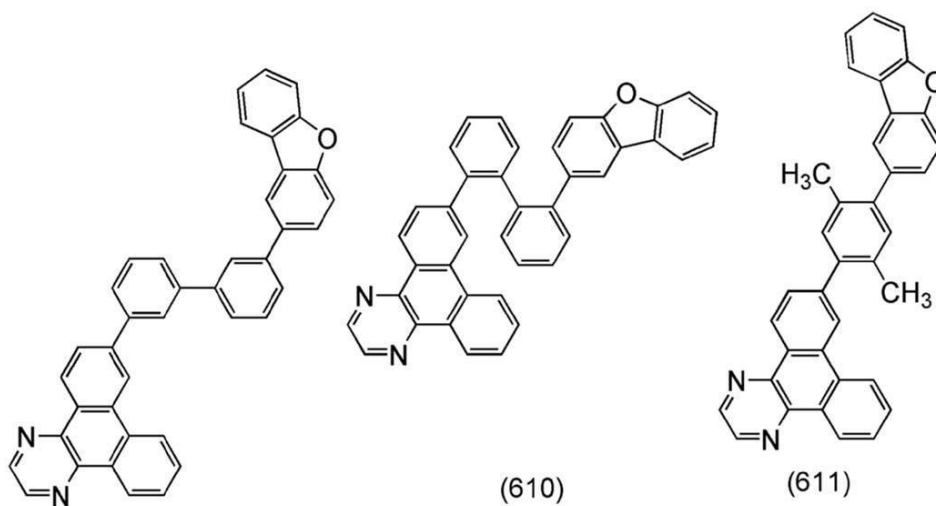
(607)



(608)

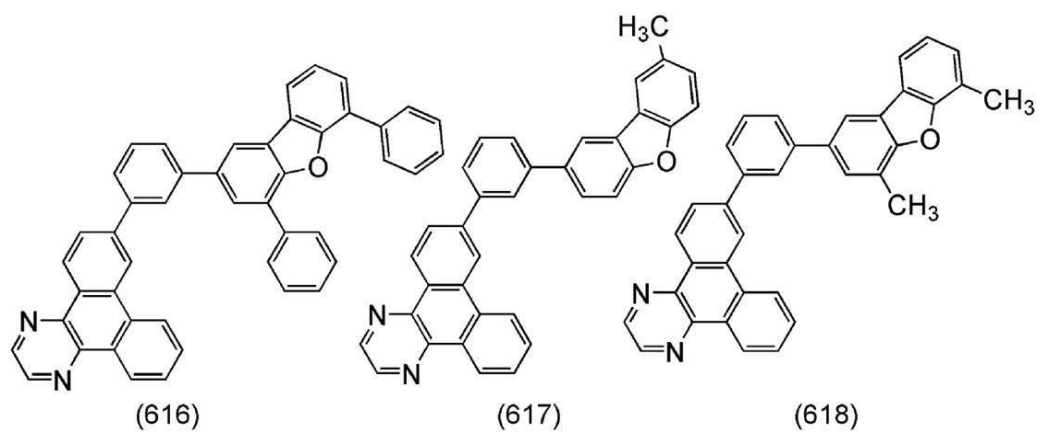
【 0 1 1 9 】

【化 4 6】

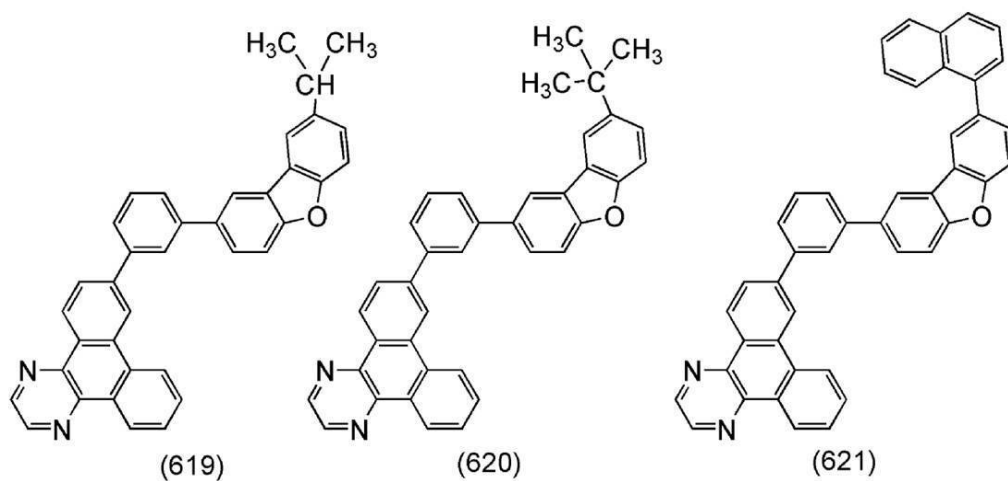


【 0 1 2 0 】

【化 4 7】



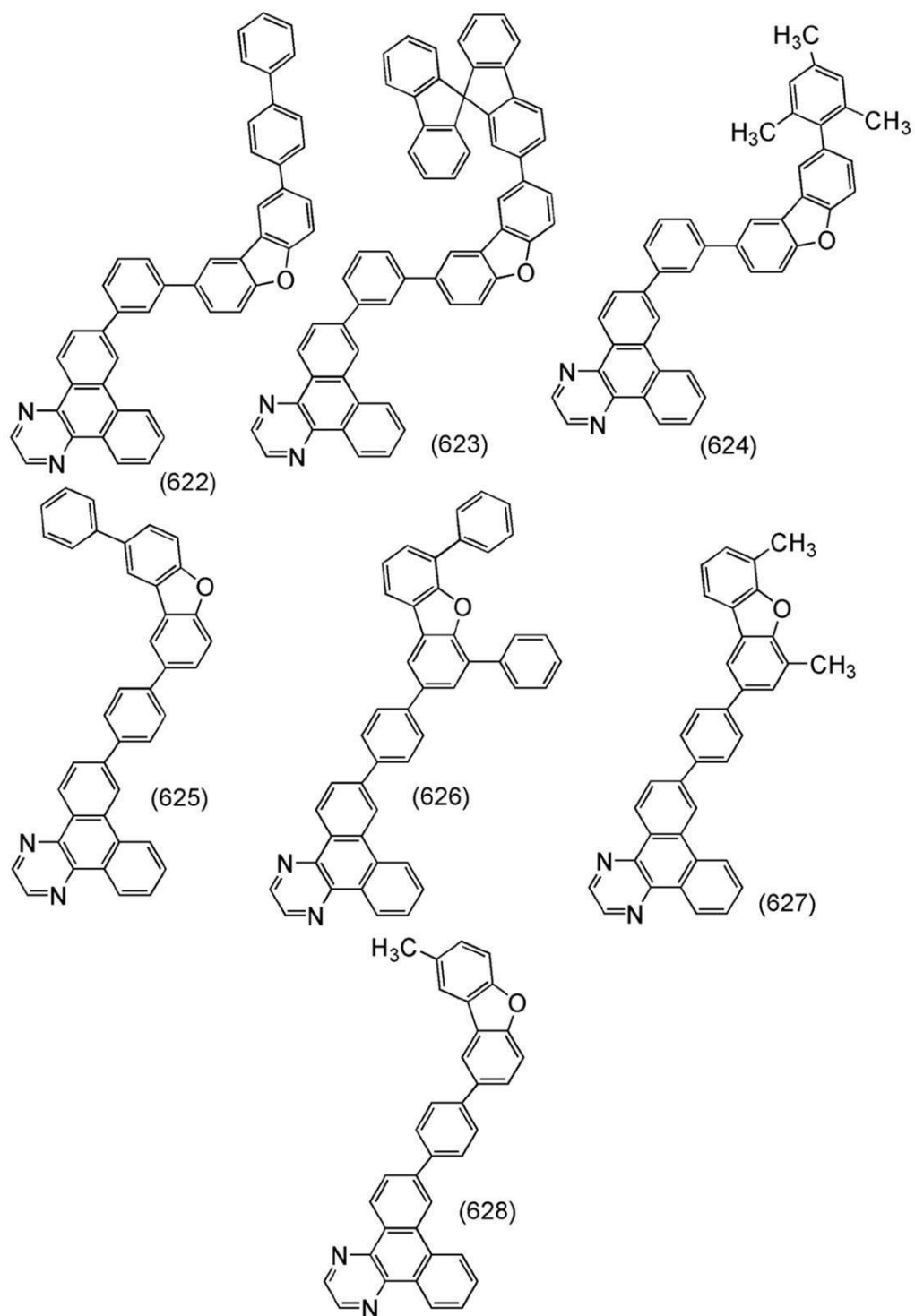
10



20

【 0 1 2 1 】

【化 4 8】



10

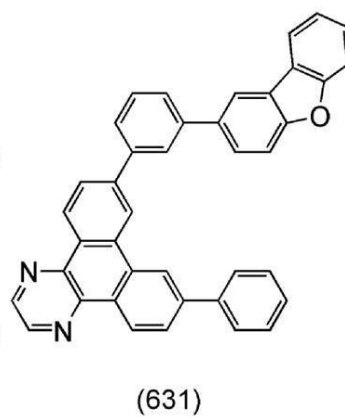
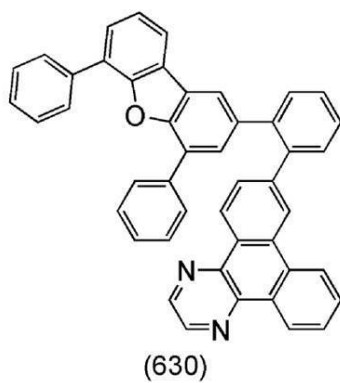
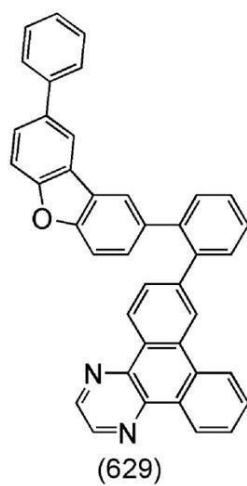
20

30

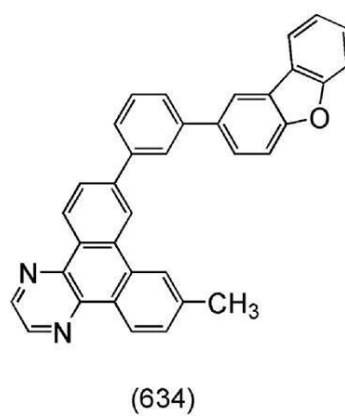
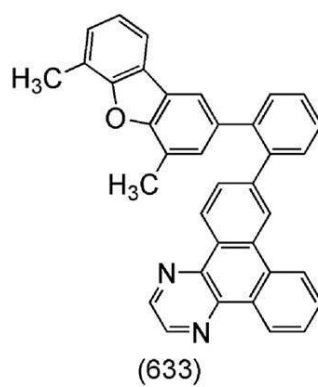
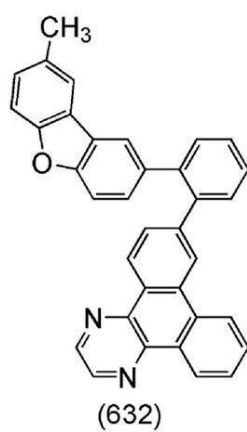
40

【 0 1 2 2 】

【化 4 9】



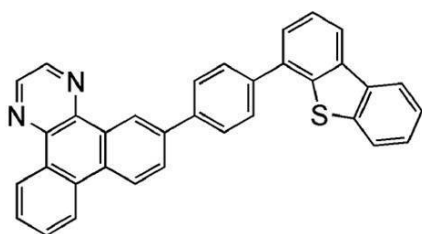
10



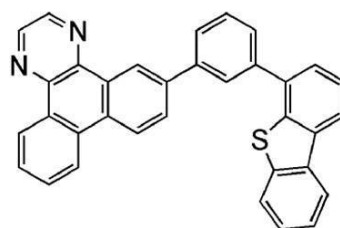
20

【 0 1 2 3 】

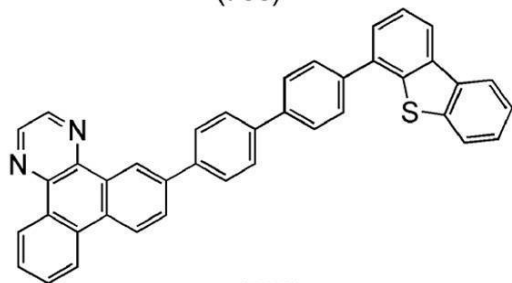
【化 5 0】



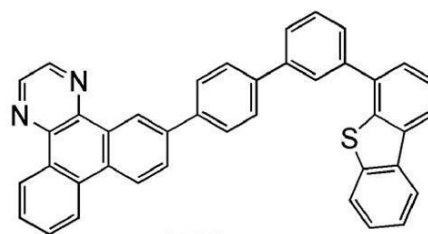
(700)



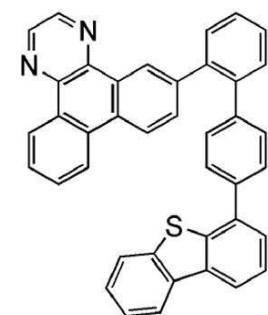
(701)



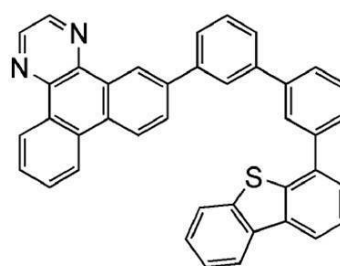
(702)



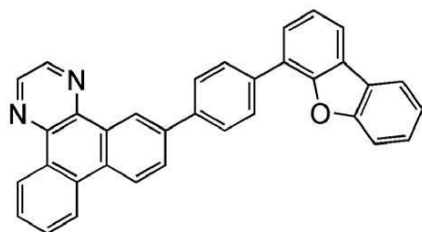
(703)



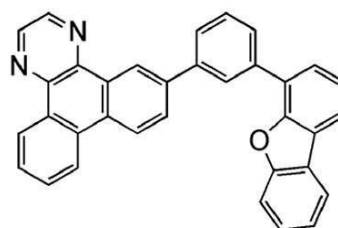
(704)



(705)



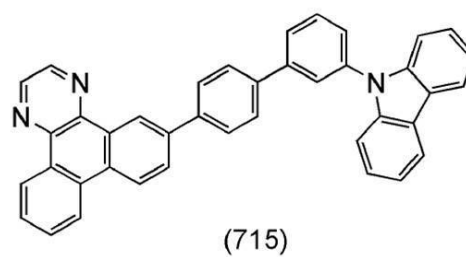
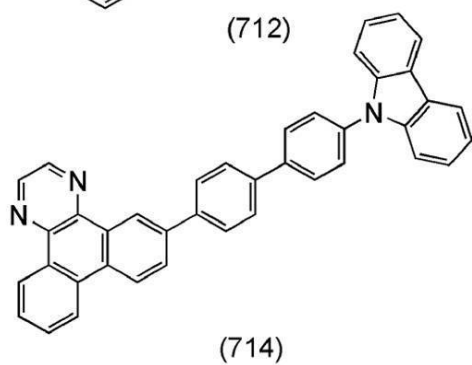
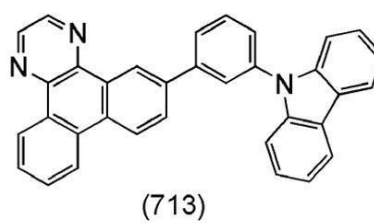
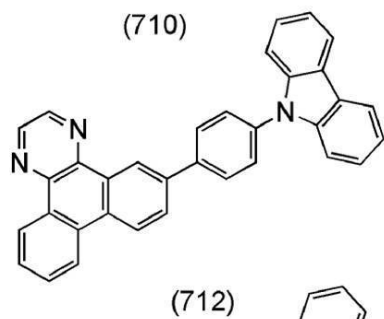
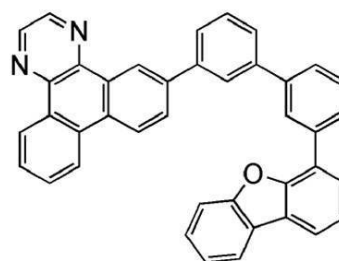
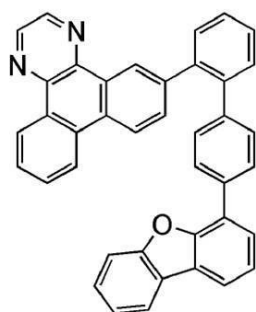
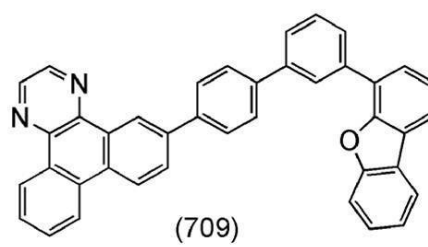
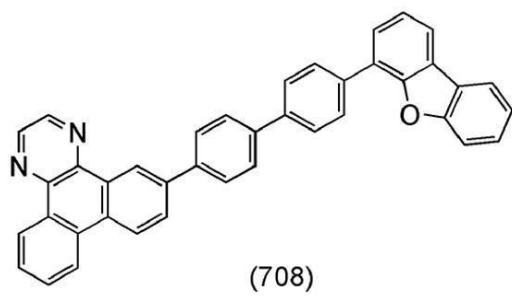
(706)



(707)

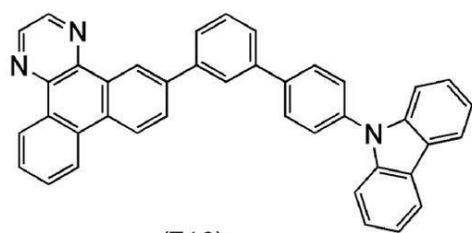
【 0 1 2 4】

【化 5 1】

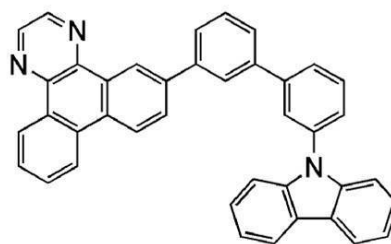


【 0 1 2 5】

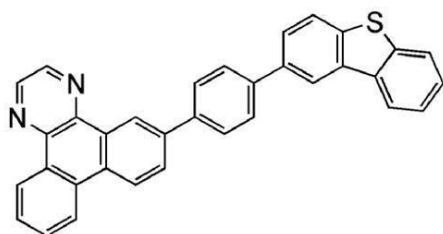
【化 5 2】



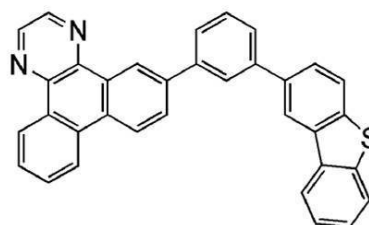
(716)



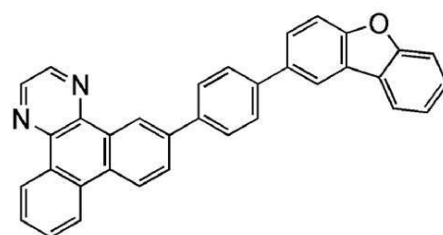
(717)



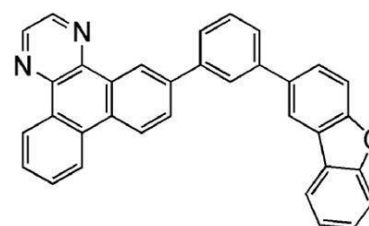
(718)



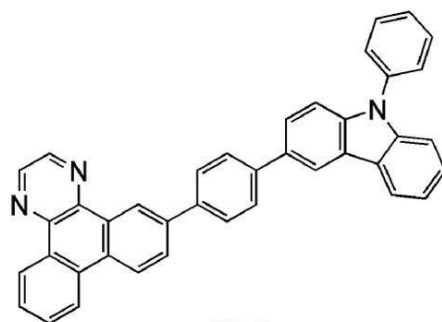
(719)



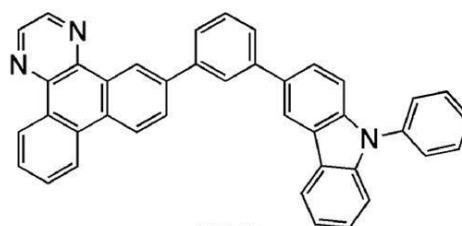
(720)



(721)



(722)



(723)

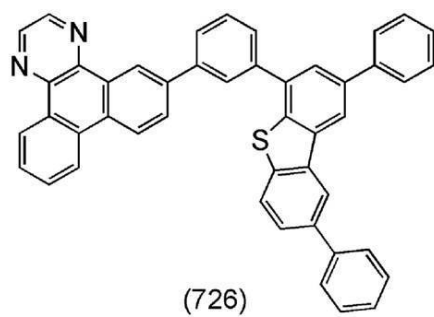
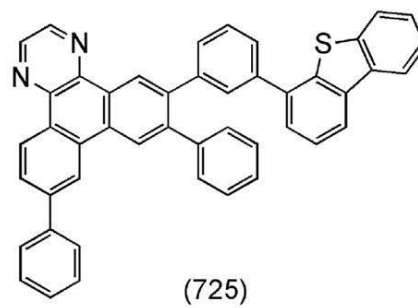
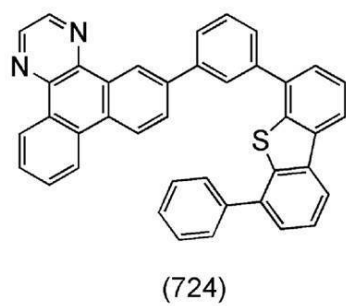
【 0 1 2 6】

10

20

30

【化 5 3】

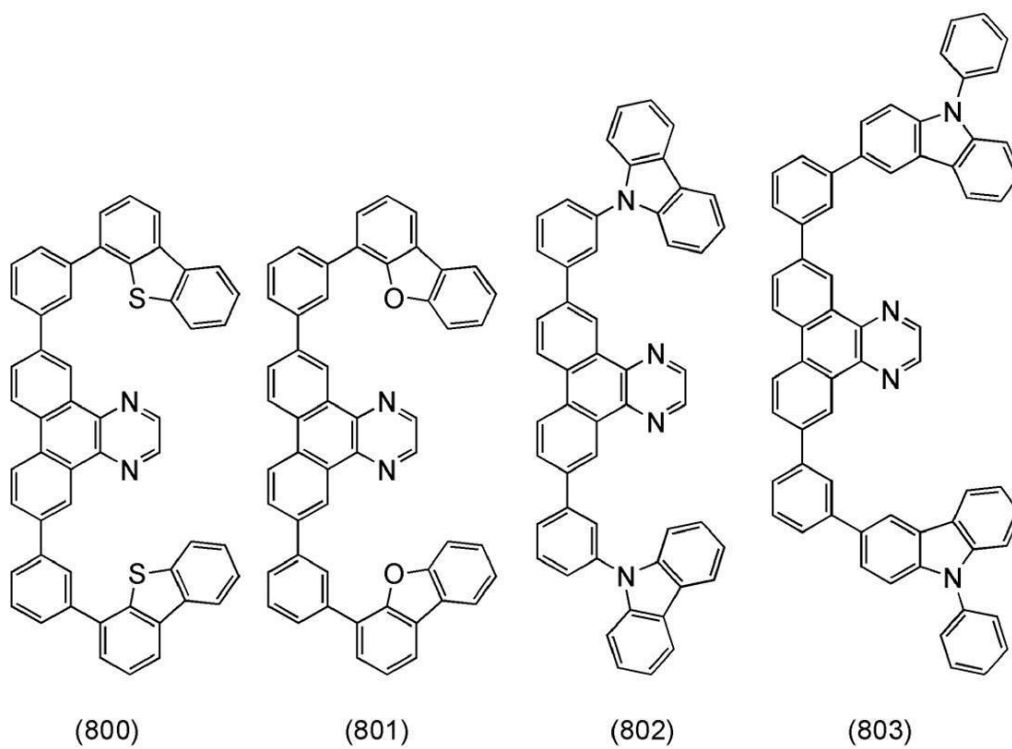


【 0 1 2 7 】

10

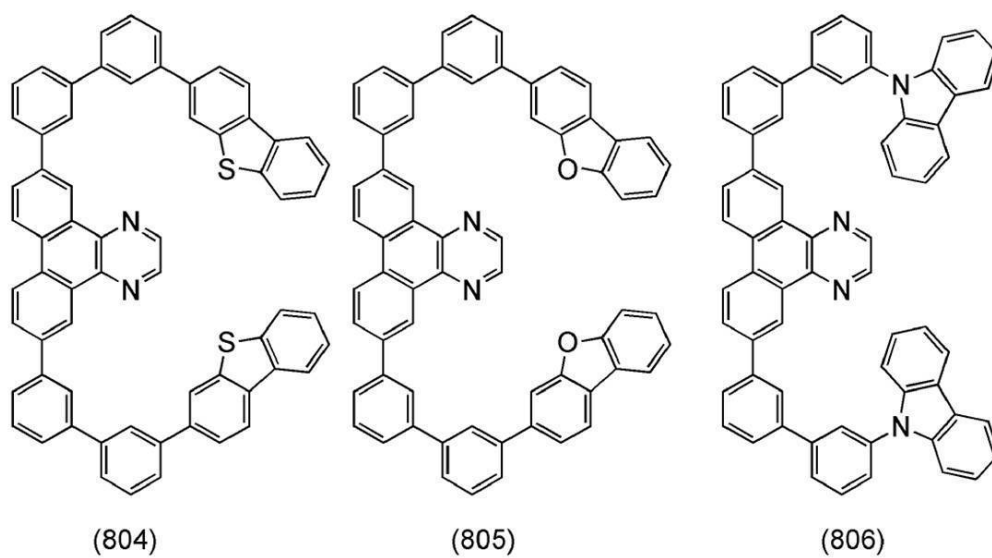
20

【化 5 4】



10

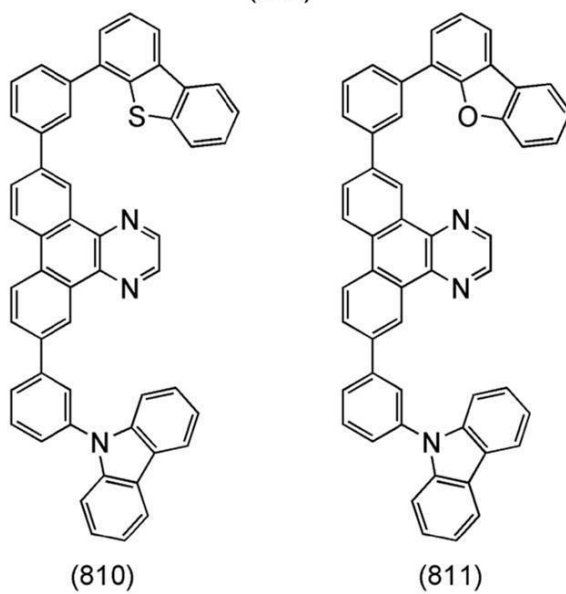
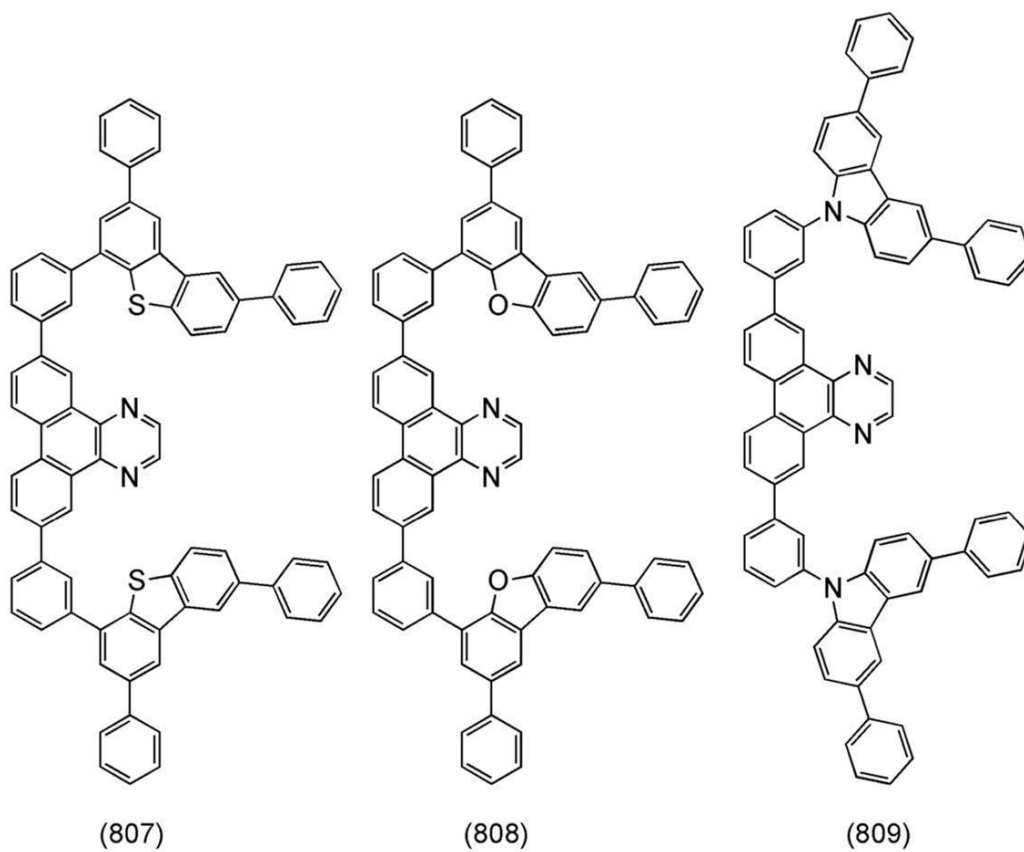
20



30

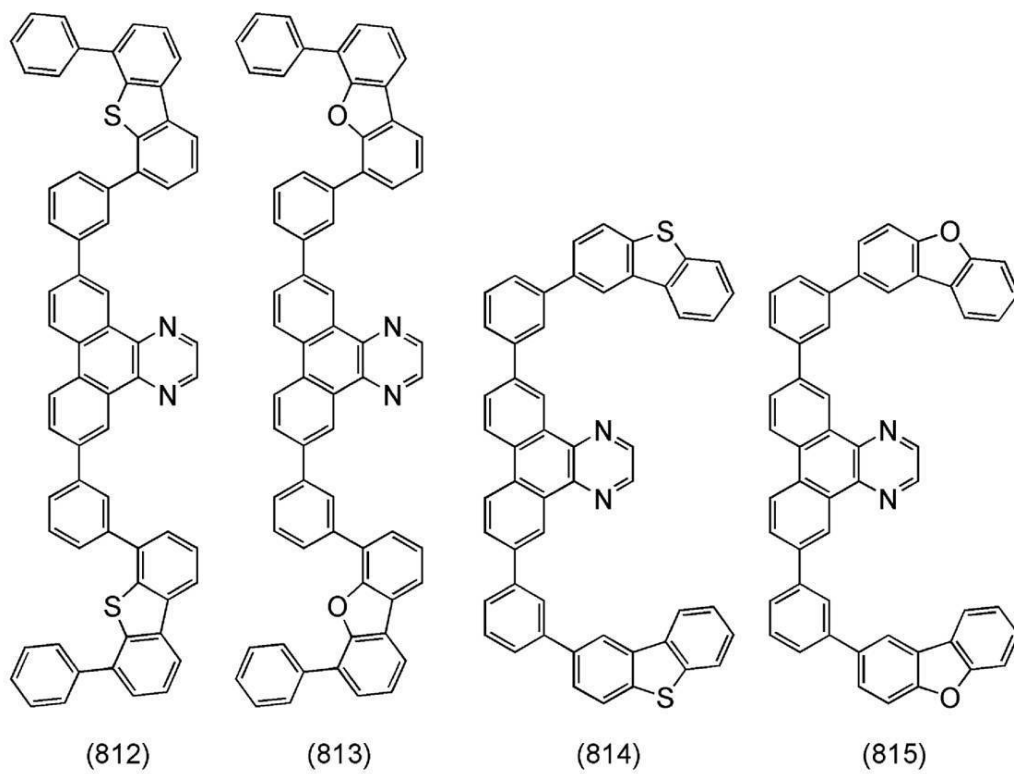
【 0 1 2 8 】

【化 5 5】



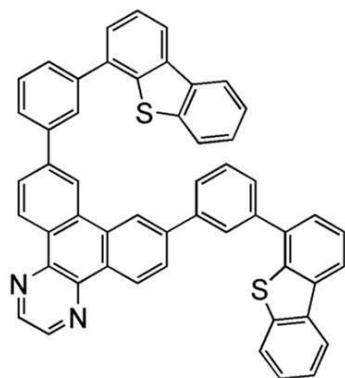
【 0 1 2 9】

【化 5 6】

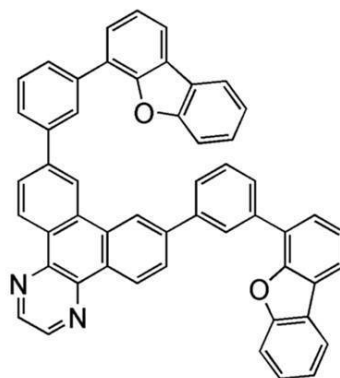


【 0 1 3 0 】

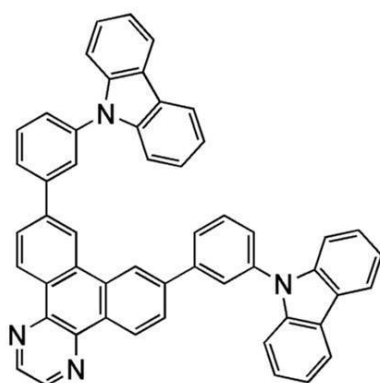
【化 5 7】



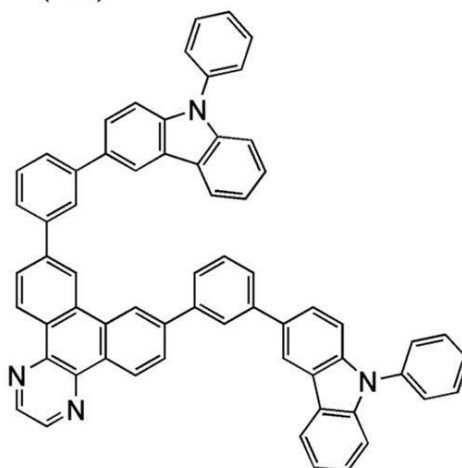
(816)



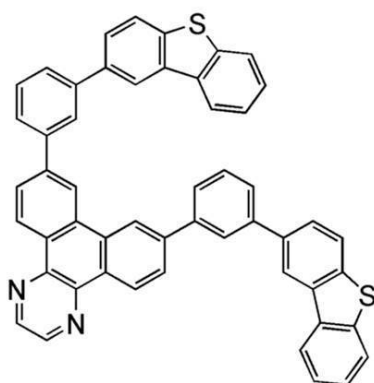
(817)



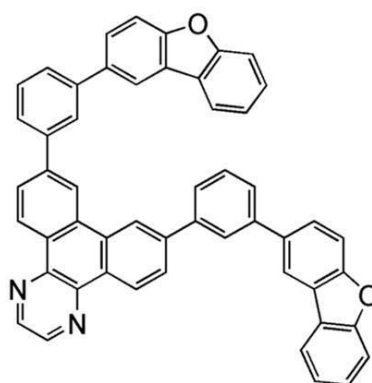
(818)



(819)



(820)



(821)

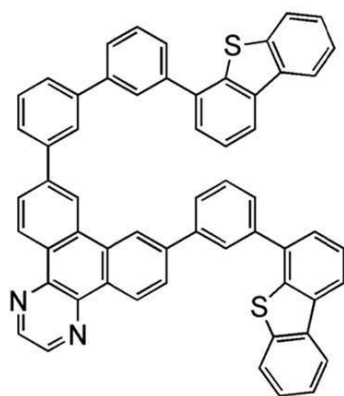
【 0 1 3 1】

10

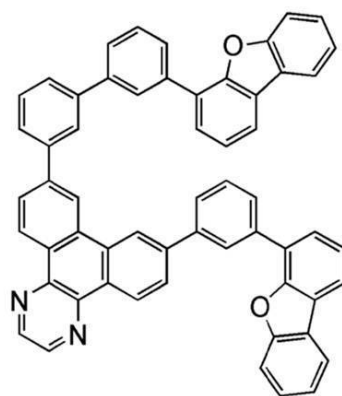
20

30

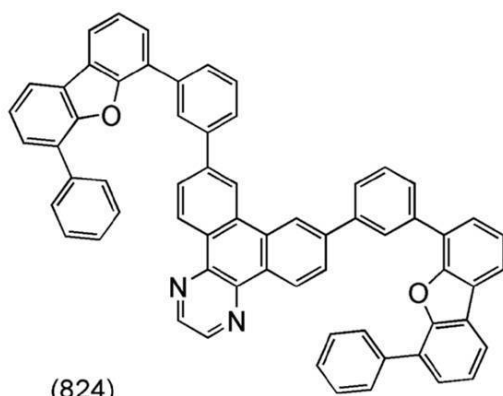
【化 5 8】



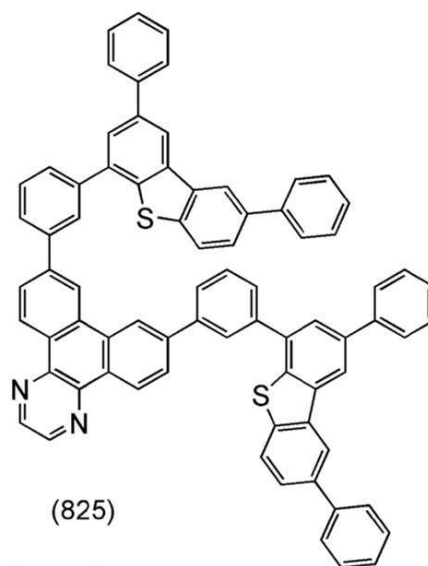
(822)



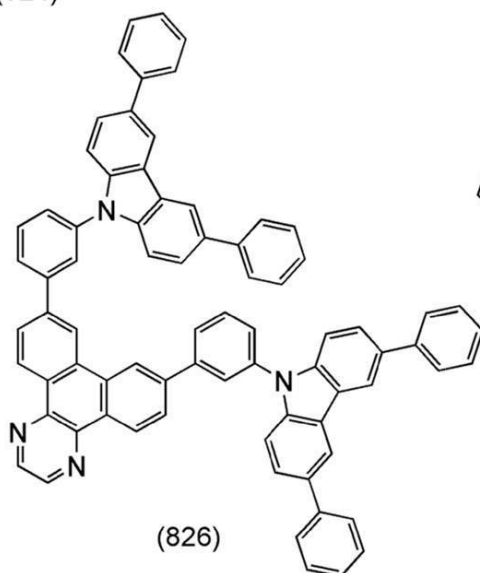
(823)



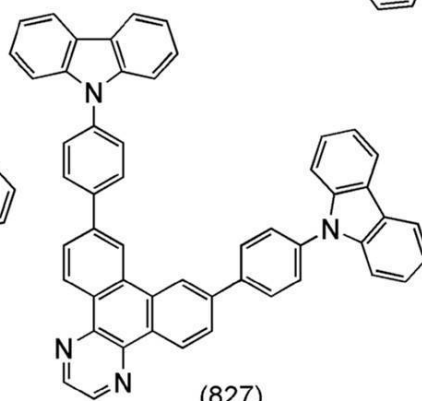
(824)



(825)



(826)



(827)

【 0 1 3 2 】

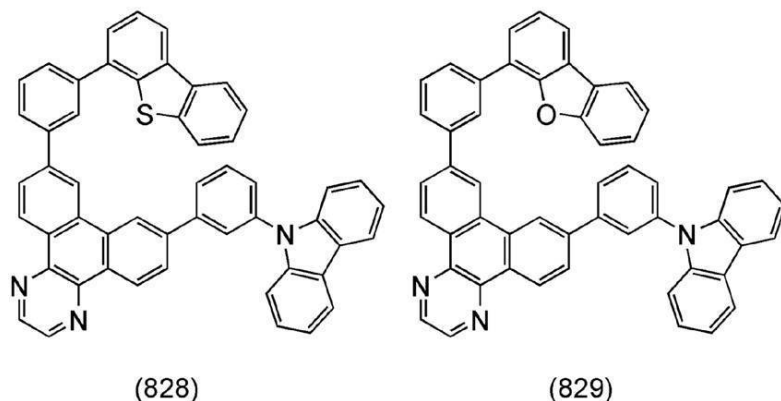
10

20

30

40

【化 5 9】



10

【0133】

なお、上記有機化合物は、高いT1準位を有しているため、高いS1準位も有している。したがって、上記有機化合物は、可視域の蛍光発光材料のホスト材料としても用いることができる。

【0134】

また、発光層113に用いる三重項励起エネルギーを発光に変える発光性材料、すなわちゲスト材料（第2の有機化合物）としては、例えば、燐光性材料や熱活性化遅延蛍光を示す熱活性化遅延蛍光（TADF：Thermally Activated Delayed Fluorescence）材料が挙げられる。

20

【0135】

また、上記燐光性材料として、例えば440nm～520nmに発光のピークを有する燐光性材料としては、トリス〔2-〔5-（2-メチルフェニル）-4-（2,6-ジメチルフェニル）-4H-1,2,4-トリアゾール-3-イル-κN2〕フェニル-κC〕イリジウム（III）（略称：Ir（mpptz-dmp）₃）、トリス〔5-メチル-3,4-ジフェニル-4H-1,2,4-トリアゾラト〕イリジウム（III）（略称：〔Ir（Mptz）₃〕）、トリス〔4-（3-ビフェニル）-5-イソプロピル-3-フェニル-4H-1,2,4-トリアゾラト〕イリジウム（III）（略称：Ir（iPrptz-3b）₃）のような4H-トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス〔3-メチル-1-（2-メチルフェニル）-5-フェニル-1H-1,2,4-トリアゾラト〕イリジウム（III）（略称：〔Ir（Mptz1-mp）₃〕）、トリス〔1-メチル-5-フェニル-3-プロピル-1H-1,2,4-トリアゾラト〕イリジウム（III）（略称：Ir（Prptz1-Me）₃）のような1H-トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、f-a-cトリス〔1-（2,6-ジイソプロピルフェニル）-2-フェニル-1H-イミダゾール〕イリジウム（III）（略称：Ir（iPrpmi）₃）、トリス〔3-（2,6-ジメチルフェニル）-7-メチルイミダゾ〔1,2-f〕フェナントリジナト〕イリジウム（III）（略称：Ir（dmpimp-t-Me）₃）のようなイミダゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、ビス〔2-（4',6'-ジフルオロフェニル）ピリジナト-N, C^{2'}〕イリジウム（III）（略称：FIr6）、ビス〔2-（4',6'-ジフルオロフェニル）ピリジナト-N, C^{2'}〕イリジウム（III）ピコリナート（略称：FIrpic）、ビス〔2-〔3',5'-ビス（トリフルオロメチル）フェニル〕ピリジナト-N, C^{2'}〕イリジウム（III）ピコリナート（略称：Ir（CF₃ppy）₂（pic））、ビス〔2-（4',6'-ジフルオロフェニル）ピリジナト-N, C^{2'}〕イリジウム（III）アセチルアセトナート（略称：FIr（acac））のような電子吸引基を有するフェニルピリジン誘導体を配位子とする有機金属イリジウム錯体が挙げられる。上述した中でも、4H-トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率にも優れるため、特に好ましい。

30

40

【0136】

50

また、例えば520nm～600nmに発光のピークを有する燐光性材料としては、トリス(4-メチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(mppm)₃])、トリス(4-tert-ブチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(tBuppm)₃])、(アセチルアセトナト)ビス(6-メチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(mppm)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(tBuppm)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス[4-(2-ノルボルニル)-6-フェニルピリミジナト]イリジウム(III)(endo-,exo-混合物)(略称:Ir(nbppm)₂(acac))、(アセチルアセトナト)ビス[5-メチル-6-(2-メチルフェニル)-4-フェニルピリミジナト]イリジウム(III)(略称:[Ir(mpppm)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(4,6-ジフェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(dppm)₂(acac)])のようなピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、(アセチルアセトナト)ビス(3,5-ジメチル-2-フェニルピラジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(mppr-Me)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(5-イソプロピル-3-メチル-2-フェニルピラジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(mppr-iPr)₂(acac)])のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス(2-フェニルピリジナト-N, C^{2'})イリジウム(III)(略称:[Ir(ppy)₃])、ビス(2-フェニルピリジナト-N, C^{2'})イリジウム(III)アセチルアセトナト(略称:[Ir(ppy)₂(acac)])、ビス(ベンゾ[h]キノリナト)イリジウム(III)アセチルアセトナト(略称:[Ir(bzq)₂(acac)])、トリス(ベンゾ[h]キノリナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(bzq)₃])、トリス(2-フェニルキノリナト-N, C^{2'})イリジウム(III)(略称:[Ir(pq)₃])、ビス(2-フェニルキノリナト-N, C^{2'})イリジウム(III)アセチルアセトナト(略称:[Ir(pq)₂(acac)])のようなピリジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体の他、トリス(アセチルアセトナト)(モノフェナントロリン)テルビウム(III)(略称:[Tb(acac)₃(Phen)])のような希土類金属錯体が挙げられる。上述した中でも、ピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率にも際だって優れるため、特に好ましい。

【0137】

また、例えば600nm～700nmに発光のピークを有する燐光性材料としては、(ジイソブチルメタナト)ビス[4,6-ビス(3-メチルフェニル)ピリミジナト]イリジウム(III)(略称:[Ir(5mdppm)₂(dibm)])、ビス[4,6-ビス(3-メチルフェニル)ピリミジナト](ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(5mdppm)₂(dpm)])、ビス[4,6-ジ(ナフタレン-1-イル)ピリミジナト](ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(dlnpm)₂(dpm)])のようなピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、(アセチルアセトナト)ビス(2,3,5-トリフェニルピラジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(tppr)₂(acac)])、ビス(2,3,5-トリフェニルピラジナト)(ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(tppr)₂(dpm)])、(アセチルアセトナト)ビス[2,3-ビス(4-フルオロフェニル)キノキサリナト]イリジウム(III)(略称:[Ir(Fdpq)₂(acac)])のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス(1-フェニルイソキノリナト-N, C^{2'})イリジウム(III)(略称:[Ir(piq)₃])、ビス(1-フェニルイソキノリナト-N, C^{2'})イリジウム(III)アセチルアセトナト(略称:[Ir(piq)₂(acac)])のようなピリジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体の他、2,3,7,8,12,13,17,18-オクタエチル-21H,23H-ポルフィリン白金(II)(略称:PtOEP)のような白金錯体や、トリス(1,3-ジフェニル-1,3-プロパンジオナト)(モノフェナントロ

リン) ユーロピウム (I I I) (略称: [Eu (DBM)₃ (Phen)])、トリス [1-(2-テノイル)-3, 3, 3-トリフルオロアセトナト] (モノフェナントロリン) ユーロピウム (I I I) (略称: [Eu (TTA)₃ (Phen)]) のような希土類金属錯体が挙げられる。上述した中でも、ピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率にも際だって優れるため、特に好ましい。また、ピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、色度の良い赤色発光が得られる。

【0138】

また、発光層 113 に用いる正孔輸送性材料、すなわちアシスト材料 (第3の有機化合物) としては、正孔注入層 111、及び正孔輸送層 112 に用いることのできる正孔輸送性の高い物質を用いればよい。

10

【0139】

とくに、発光層 113 に用いるアシスト材料 (第3の有機化合物) としては、カルバゾール骨格を含む化合物が好ましい。カルバゾール骨格を有する化合物は、信頼性が良好であり、また、正孔輸送性が高く、駆動電圧低減にも寄与するため好ましい。

【0140】

なお、これらのホスト材料 (第1の有機化合物) およびアシスト材料 (第3の有機化合物) は、青色の領域に吸収スペクトルを有さないことが好ましい。具体的には、吸収スペクトルの吸収端が 440 nm 以下であることが好ましい。

【0141】

電子輸送層 114 は、電子輸送性の高い物質を含む層である。電子輸送層 114 には、上述した電子輸送性材料の他、トリス (8-キノリノラト) アルミニウム (略称: Alq₃)、トリス (4-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム (略称: Almq₃)、ビス (10-ヒドロキシベンゾ [h] キノリナト) ベリリウム (略称: BeBq₂)、BA1q、Zn (BOX)₂、ビス [2-(2-ヒドロキシフェニル) ベンゾチアゾール] 亜鉛 (略称: Zn (BTZ)₂) などの金属錯体を用いることができる。また、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール (略称: PBD)、1, 3-ビス [5-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル] ベンゼン (略称: OXD-7)、3-(4'-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4''-ビフェニル)-1, 2, 4-トリアゾール (略称: TAZ)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ビフェニル)-1, 2, 4-トリアゾール (略称: p-EtTAZ)、バソフェナントロリン (略称: BPhen)、バソキュプロイン (略称: BCP)、4, 4'-ビス (5-メチルベンゾオキサゾール-2-イル) スチルベン (略称: BzOs) などの複素芳香族化合物も用いることができる。また、ポリ (2, 5-ピリジンジイル) (略称: PPy)、ポリ [(9, 9-ジヘキシルフルオレン-2, 7-ジイル)-co-(ピリジン-3, 5-ジイル)] (略称: PF-Py)、ポリ [(9, 9-ジオクタイルフルオレン-2, 7-ジイル)-co-(2, 2'-ビピリジン-6, 6'-ジイル)] (略称: PF-BPy) のような高分子化合物を用いることもできる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質である。なお、正孔よりも電子の輸送性の高い物質であれば、上記以外の物質を電子輸送層 114 として用いてもよい。

20

30

40

【0142】

また、電子輸送層 114 は、単層のものだけでなく、上記物質からなる層が2層以上積層したものとしてもよい。

【0143】

また、電子輸送層 114 に、先に示す2位及び3位が無置換のジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格と、置換もしくは無置換のジベンゾチオフェン骨格、置換もしくは無置換のジベンゾフラン骨格、または置換もしくは無置換のカルバゾール骨格の中から選ばれた正孔輸送性骨格と、アリーレン骨格と、を有し、2位及び3位が無置換のジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格と、正孔輸送性骨格が、アリーレン骨格を介して結合する有機化合物

50

を適用してもよい。

【0144】

電子注入層115は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入層115には、フッ化リチウム(LiF)、フッ化セシウム(CsF)、フッ化カルシウム(CaF₂)、リチウム酸化物(LiO_x)等のようなアルカリ金属またはアルカリ土類金属の化合物を用いることができる。また、フッ化エルビウム(ErF₃)のような希土類金属化合物を用いることができる。また、上述した電子輸送層114を構成する物質を用いることもできる。

【0145】

あるいは、電子注入層115に、有機化合物と電子供与体(ドナー)とを混合してなる複合材料を用いてもよい。このような複合材料は、電子供与体によって有機化合物に電子が発生するため、電子注入性および電子輸送性に優れている。この場合、有機化合物としては、発生した電子の輸送に優れた材料であることが好ましく、具体的には、例えば上述した電子輸送層114を構成する物質(金属錯体や複素芳香族化合物等)を用いることができる。電子供与体としては、有機化合物に対し電子供与性を示す物質であればよい。具体的には、アルカリ金属やアルカリ土類金属や希土類金属が好ましく、リチウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、エルビウム、イッテルビウム等が挙げられる。また、アルカリ金属酸化物やアルカリ土類金属酸化物が好ましく、リチウム酸化物、カルシウム酸化物、バリウム酸化物等が挙げられる。また、酸化マグネシウムのようなルイス塩基を用いることもできる。また、テトラシアフルバレン(略称: TTF)等の有機化合物を用い

10

20

【0146】

なお、上述した正孔注入層111、正孔輸送層112、発光層113、電子輸送層114、及び電子注入層115は、それぞれ、蒸着法(真空蒸着法を含む)、インクジェット法、塗布法等の方法で形成することができる。

【0147】

また、上述した発光素子は、第1の電極101および第2の電極103との間に生じた電位差により電流が流れ、EL層102において正孔と電子とが再結合することにより発光する。そして、この発光は、第1の電極101および第2の電極103のいずれか一方または両方を通して外部に取り出される。従って、第1の電極101および第2の電極103のいずれか一方、または両方が透光性を有する電極となる。

30

【0148】

次に、図1(B)及び図1(C)に示す発光素子について、以下説明を行う。

【0149】

図1(B)に示す発光素子は、第1の電極301と、第2の電極303の間に、複数の発光層(第1の発光層311、第2の発光層312)を有するタンデム型の発光素子である。

【0150】

第1の電極301は、陽極として機能する電極であり、第2の電極303は陰極として機能する電極である。なお、第1の電極301及び第2の電極303は、第1の電極101及び第2の電極103と同様な構成を用いることができる。

40

【0151】

また、複数の発光層(第1の発光層311、第2の発光層312)は、発光層113と同様の構成を用いることができる。なお、第1の発光層311と第2の発光層312は、同じ構成であっても異なる構成であってもよく、いずれか一方に発光層113と同様の構成を用いればよい。また、第1の発光層311、第2の発光層312以外に、先に説明した、正孔注入層111、正孔輸送層112、電子輸送層114、及び電子注入層115を適宜設けてもよい。

【0152】

また、複数の発光層(第1の発光層311、第2の発光層312)の間には、電荷発生

50

層 3 1 3 が設けられている。電荷発生層 3 1 3 は、第 1 の電極 3 0 1 と第 2 の電極 3 0 3 に電圧を印加したときに、一方の発光層に電子を注入し、他方の発光層に正孔を注入する機能を有する。本実施の形態の場合には、第 1 の電極 3 0 1 に第 2 の電極 3 0 3 よりも電位が高くなるように電圧を印加すると、電荷発生層 3 1 3 から第 1 の発光層 3 1 1 に電子が注入され、第 2 の発光層 3 1 2 に正孔が注入される。

【0153】

なお、電荷発生層 3 1 3 は、光の取り出し効率の点から、可視光に対して透光性を有する（具体的には、電荷発生層 3 1 3 に対する可視光の透過率が、40%以上）ことが好ましい。また、電荷発生層 3 1 3 は、第 1 の電極 3 0 1 や第 2 の電極 3 0 3 よりも低い導電率であっても機能する。

10

【0154】

電荷発生層 3 1 3 は、正孔輸送性の高い有機化合物に電子受容体（アクセプター）が添加された構成であっても、電子輸送性の高い有機化合物に電子供与体（ドナー）が添加された構成であってもよい。また、これらの両方の構成が積層されていても良い。

【0155】

正孔輸送性の高い有機化合物に電子受容体が添加された構成とする場合において、正孔輸送性の高い有機化合物としては、例えば、NPBやTPD、TDATA、MTDATA、4,4'-ビス[N-(スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：BSPB）などの芳香族アミン化合物等を用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質である。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い有機化合物であれば、上記以外の物質を用いても構わない。

20

【0156】

また、電子受容体としては、7,7,8,8-テトラシアノ-2,3,5,6-テトラフルオロキノジメタン（略称：F4-TCNQ）、クロラニル等を挙げることができる。また、遷移金属酸化物を挙げることができる。また元素周期表における第4族乃至第8族に属する金属の酸化物を挙げることができる。具体的には、酸化バナジウム、酸化ニオブ、酸化タンタル、酸化クロム、酸化モリブデン、酸化タングステン、酸化マンガン、酸化レニウムは電子受容性が高いため好ましい。中でも特に、酸化モリブデンは大気中でも安定であり、吸湿性が低く、扱いやすいため好ましい。

30

【0157】

一方、電子輸送性の高い有機化合物に電子供与体が添加された構成とする場合において、電子輸送性の高い有機化合物としては、例えば、Alq、Almq₃、BeBq₂、BALqなど、キノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体等を用いることができる。また、この他、Zn(BOX)₂、Zn(BTZ)₂などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体なども用いることができる。さらに、金属錯体以外にも、PBDやOXD-7、TAZ、BPhen、BCPなども用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質である。なお、正孔よりも電子の輸送性の高い有機化合物であれば、上記以外の物質を用いても構わない。

40

【0158】

また、電子供与体としては、アルカリ金属またはアルカリ土類金属または希土類金属または元素周期表における第13族に属する金属およびその酸化物、炭酸塩を用いることができる。具体的には、リチウム(Li)、セシウム(Cs)、マグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)、イッテルビウム(Yb)、インジウム(In)、酸化リチウム、炭酸セシウムなどを用いることが好ましい。また、テトラチアナフタセンのような有機化合物を電子供与体として用いてもよい。

【0159】

なお、上述した材料を用いて電荷発生層 3 1 3 を形成することにより、発光層が積層された場合における駆動電圧の上昇を抑制することができる。

50

【0160】

図1（B）においては、発光層を2層有する発光素子について説明したが、図1（C）に示すように、 n 層（ただし、 n は、3以上）の発光層を積層した発光素子についても、同様に適用することが可能である。本実施の形態に係る発光素子のように、一对の電極間に複数の発光層を有する場合、発光層と発光層との間に電荷発生層313を配置することで、電流密度を低く保ったまま、高輝度領域での発光が可能である。電流密度を低く保てるため、長寿命素子を実現できる。また、照明を応用例とした場合は、電極材料の抵抗による電圧降下を小さくできるので、大面積での均一発光が可能となる。また、低電圧駆動が可能で消費電力が低い発光装置を実現することができる。

【0161】

10

また、それぞれの発光層の発光色を異なるものにすることで、発光素子全体として、所望の色の発光を得ることができる。例えば、2つの発光層を有する発光素子において、第1の発光層の発光色と第2の発光層の発光色を補色の関係になるようにすることで、発光素子全体として白色発光する発光素子を得ることも可能である。なお、補色とは、混合すると無彩色になる色同士の関係をいう。つまり、補色の関係にある色を発光する物質から得られた光と混合すると、白色発光を得ることができる。

【0162】

また、3つの発光層を有する発光素子の場合でも同様であり、例えば、第1の発光層の発光色が赤色であり、第2の発光層の発光色が緑色であり、第3の発光層の発光色が青色である場合、発光素子全体としては、白色発光を得ることができる。

20

【0163】

以上のように、本実施の形態に示す一对の電極間に挟持された発光層を含む発光素子は、発光層に有機化合物を有し、該有機化合物が、2位及び3位が無置換のジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格と、置換もしくは無置換のジベンゾチオフェン骨格、置換もしくは無置換のジベンゾフラン骨格、または置換もしくは無置換のカルバゾール骨格の中から選ばれた正孔輸送性骨格と、アリーレン骨格と、を有し、2位及び3位が無置換のジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格と、正孔輸送性骨格が、アリーレン骨格を介して結合する有機化合物を用いる。このような有機化合物は、広いエネルギーギャップを有するため、発光素子において、発光層の発光物質を分散させるホスト材料に用いることで、高い電流効率を得ることができる。特に、燐光性化合物を分散させるホスト材料として好適である。

30

【0164】

また、上記有機化合物を発光層に含む発光素子とすることで、駆動電圧の低い発光素子を実現することができる。また、長寿命の発光素子を実現することができる。

【0165】

なお、本実施の形態に示す構成は、他の実施の形態に示す構成と適宜組み合わせて用いることができるものとする。

【0166】

（実施の形態2）

本実施の形態では、本発明の一態様の発光素子を適用した発光装置について図2を用いて説明する。なお、図2（A）は発光装置を示す上面図、図2（B）は図2（A）をA—B及びC—Dで切断した断面図である。

40

【0167】

本実施の形態の発光装置は、駆動回路部であるソース側駆動回路401及びゲート側駆動回路403、画素部402、封止基板404、シール材405、FPC（フレキシブルプリントサーキット）409、並びに素子基板410を有する。シール材405で囲まれた内側は、空間になっている。

【0168】

なお、引き回し配線408はソース側駆動回路401及びゲート側駆動回路403に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となるFPC409からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここではFPC

50

しか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基板（PWB）が取り付けられていても良い。本明細書における発光装置には、発光装置本体だけでなく、それにFPC又はPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

【0169】

図2（A）に示す素子基板410上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、図2（B）では、駆動回路部であるソース側駆動回路401と、画素部402中の一つの画素が示されている。

【0170】

なお、ソース側駆動回路401はnチャネル型TFT423とpチャネル型TFT424とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路は、TFTで形成される種々のCMOS回路、PMOS回路又はNMOS回路で形成しても良い。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー体型を示すが、必ずしもその必要はなく、駆動回路を基板上ではなく外部に形成することもできる。

【0171】

また、画素部402はスイッチング用TFT411と、電流制御用TFT412とそのドレインに電気的に接続された第1の電極413とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極413の端部を覆って絶縁物414が形成されている。ここでは、ポジ型の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成する。

【0172】

また、被覆性を良好なものとするため、絶縁物414の上端部又は下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにする。例えば、絶縁物414の材料としてポジ型の感光性アクリルを用いた場合、絶縁物414の上端部のみに曲率半径（ $0.2\mu\text{m}\sim 3\mu\text{m}$ ）を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物414として、ネガ型の感光性樹脂、或いはポジ型の感光性樹脂のいずれも使用することができる。

【0173】

第1の電極413上には、EL層416、及び第2の電極417がそれぞれ形成されている。第1の電極413、EL層416、及び第2の電極417は、それぞれ実施の形態1に挙げた材料で形成することができる。

【0174】

さらにシール材405で封止基板404を素子基板410と貼り合わせることで、素子基板410、封止基板404、及びシール材405で囲まれた空間407に発光素子418が備えられた構造になっている。なお、空間407には、充填材が充填されており、不活性気体（窒素やアルゴン等）が充填される場合の他、シール材で充填される場合もある。

【0175】

なお、シール材405にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板404に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP（Fiberglass-Reinforced Plastics）、PVF（ポリビニルフロライド）、ポリエステル又はアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。

【0176】

以上のようにして、本発明の一態様の発光素子を有するアクティブマトリクス型の発光装置を得ることができる。

【0177】

また、本発明の一態様の発光素子は、上述したアクティブマトリクス型の発光装置のみならずパッシブマトリクス型の発光装置に用いることもできる。図3に本発明の一態様の発光素子を用いたパッシブマトリクス型の発光装置の斜視図及び断面図を示す。なお、図3（A）は、発光装置を示す斜視図、図3（B）は図3（A）をX-Yで切断した断面図である。

【0178】

図3において、基板501上の第1の電極502と第2の電極503との間にはEL層504が設けられている。第1の電極502の端部は絶縁層505で覆われている。そして、絶縁層505上には隔壁層506が設けられている。隔壁層506の側壁は、基板面に近くなるに伴って、一方の側壁と他方の側壁との間隔が狭くなるような傾斜を有する。つまり、隔壁層506の短辺方向の断面は、台形状であり、底辺（絶縁層505と接する辺）の方が上辺（絶縁層505と接しない辺）よりも短い。このように、隔壁層506を設けることで、クロストーク等に起因した発光素子の不良を防ぐことができる。

【0179】

以上により、本発明の一態様の発光素子を適用した発光装置を得ることができる。

【0180】

なお、本実施の形態で示した発光装置は、いずれも本発明の一態様の発光素子を用いて形成されることから、消費電力の低い発光装置を得ることができる。

【0181】

なお、本実施の形態は、他の実施の形態と適宜組み合わせることが可能である。

【0182】

（実施の形態3）

本実施の形態では、本発明の一態様の発光装置を用いて完成させた様々な電子機器および照明器具の一例について、図4及び図5を用いて説明する。

【0183】

電子機器としては、例えば、テレビジョン装置（テレビ、またはテレビジョン受信機ともいう）、コンピュータ用などのモニタ、デジタルカメラ、デジタルビデオカメラ、デジタルフォトフレーム、携帯電話機（携帯電話、携帯電話装置ともいう）、携帯型ゲーム機、携帯情報端末、音響再生装置、パチンコ機などの大型ゲーム機などが挙げられる。

【0184】

本発明の一態様の複素環化合物を含む発光素子を、可撓性を有する基板上に作製することで、曲面を有する発光部を有する電子機器、照明装置を実現することができる。

【0185】

また、本発明の一態様の複素環化合物を含む発光素子が備える一对の電極を可視光に対する透光性を有する材料を用いて形成することで、シースルーの発光部を有する電子機器、照明装置を実現することができる。

【0186】

また、本発明の一態様を適用した発光装置は、自動車の照明にも適用することができ、例えば、ダッシュボードや、フロントガラス、天井等に照明を設置することもできる。

【0187】

図4（A）は、テレビジョン装置の一例を示している。テレビジョン装置7100は、筐体7101に表示部7103が組み込まれている。表示部7103により、映像を表示することが可能であり、発光装置を表示部7103に用いることができる。また、ここでは、スタンド7105により筐体7101を支持した構成を示している。

【0188】

テレビジョン装置7100の操作は、筐体7101が備える操作スイッチや、別体のリモコン操作機7110により行うことができる。リモコン操作機7110が備える操作キー7109により、チャンネルや音量の操作を行うことができ、表示部7103に表示される映像を操作することができる。また、リモコン操作機7110に、当該リモコン操作機7110から出力する情報を表示する表示部7107を設ける構成としてもよい。

【0189】

なお、テレビジョン装置7100は、受信機やモデムなどを備えた構成とする。受信機により一般のテレビ放送の受信を行うことができ、さらにモデムを介して有線又は無線による通信ネットワークに接続することにより、一方向（送信者から受信者）又は双方向（送信者と受信者間、あるいは受信者間同士など）の情報通信を行うことも可能である。

【0190】

10

20

30

40

50

図4(B)はコンピュータであり、本体7201、筐体7202、表示部7203、キーボード7204、外部接続ポート7205、ポインティングデバイス7206等を含む。なお、コンピュータは、発光装置をその表示部7203に用いることにより作製される。

【0191】

図4(C)は携帯型遊技機であり、筐体7301と筐体7302の2つの筐体で構成されており、連結部7303により、開閉可能に連結されている。筐体7301には表示部7304が組み込まれ、筐体7302には表示部7305が組み込まれている。また、図4(C)に示す携帯型遊技機は、その他、スピーカ部7306、記録媒体挿入部7307、LEDランプ7308、入力手段(操作キー7309、接続端子7310、センサ7311(力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、光、液、磁気、温度、化学物質、音声、時間、硬度、電場、電流、電圧、電力、放射線、流量、湿度、傾度、振動、に於いて又は赤外線を測定する機能を含むもの)、マイクロフォン7312)等を備えている。もちろん、携帯型遊技機の構成は上述のものに限定されず、少なくとも表示部7304および表示部7305の両方、又は一方に発光装置を用いていけばよく、その他付属設備が適宜設けられた構成とすることができる。図4(C)に示す携帯型遊技機は、記録媒体に記録されているプログラム又はデータを読み出して表示部に表示する機能や、他の携帯型遊技機と無線通信を行って情報を共有する機能を有する。なお、図4(C)に示す携帯型遊技機が有する機能はこれに限定されず、様々な機能を有することができる。

【0192】

図4(D)は、携帯電話機の一例を示している。携帯電話機7400は、筐体7401に組み込まれた表示部7402の他、操作ボタン7403、外部接続ポート7404、スピーカ7405、マイク7406などを備えている。なお、携帯電話機7400は、発光装置を表示部7402に用いることにより作製される。

【0193】

図4(D)に示す携帯電話機7400は、表示部7402を指などで触れることで、情報を入力することができる。また、電話を掛ける、或いはメールを作成するなどの操作は、表示部7402を指などで触れることにより行うことができる。

【0194】

表示部7402の画面は主として3つのモードがある。第1は、画像の表示を主とする表示モードであり、第2は、文字等の情報の入力を主とする入力モードである。第3は表示モードと入力モードの2つのモードが混合した表示+入力モードである。

【0195】

例えば、電話を掛ける、或いはメールを作成する場合は、表示部7402を文字の入力を主とする文字入力モードとし、画面に表示させた文字の入力操作を行えばよい。この場合、表示部7402の画面のほとんどにキーボード又は番号ボタンを表示させることが好ましい。

【0196】

また、携帯電話機7400内部に、ジャイロ、加速度センサ等の傾きを検出するセンサを有する検出装置を設けることで、携帯電話機7400の向き(縦か横か)を判断して、表示部7402の画面表示を自動的に切り替えるようにすることができる。

【0197】

また、画面モードの切り替えは、表示部7402を触れること、又は筐体7401の操作ボタン7403の操作により行われる。また、表示部7402に表示される画像の種類によって切り替えるようにすることもできる。例えば、表示部に表示する画像信号が動画のデータであれば表示モード、テキストデータであれば入力モードに切り替える。

【0198】

また、入力モードにおいて、表示部7402の光センサで検出される信号を検知し、表示部7402のタッチ操作による入力が一定期間ない場合には、画面のモードを入力モードから表示モードに切り替えるように制御してもよい。

【0199】

表示部7402は、イメージセンサとして機能させることもできる。例えば、表示部7402に掌や指で触れ、掌紋、指紋等を撮像することで、本人認証を行うことができる。また、表示部に近赤外光を発光するバックライト又は近赤外光を発光するセンシング用光源を用いれば、指静脈、掌静脈などを撮像することもできる。

【0200】

図4(E)は卓上照明器具603であり、照明部7501、傘7502、可変アーム7503、支柱7504、台7505、電源7506を含む。なお、卓上照明器具は、発光装置を照明部7501に用いることにより作製される。なお、照明器具には天井固定型の照明器具又は壁掛け型の照明器具なども含まれる。

10

【0201】

図5(A)は、発光装置を、室内の照明装置601として用いた例である。発光装置は大面積化も可能であるため、大面積の照明装置として用いることができる。その他、ロール型の照明装置602として用いることもできる。なお、図5(A)に示すように、室内の照明装置601を備えた部屋で、図4(E)で説明した卓上照明器具603を併用してもよい。

【0202】

図5(B)に別の照明装置の例を示す。図5(B)に示す卓上照明装置は、照明部9501、支柱9503、支持台9505等を含む。照明部9501は、本発明の一態様の複素環化合物を含む。このように、可撓性を有する基板上に発光素子を作製することで、曲面を有する照明装置、又はフレキシブルに曲がる照明部を有する照明装置とすることができる。このように、フレキシブルな発光装置を照明装置として用いることで、照明装置のデザインの自由度が向上するのみでなく、例えば、自動車の天井、ダッシュボード等の曲面を有する場所にも照明装置を設置することが可能となる。

20

【0203】

以上のようにして、発光装置を適用して電子機器や照明器具を得ることができる。発光装置の適用範囲は極めて広く、あらゆる分野の電子機器に適用することが可能である。

【0204】

なお、本実施の形態に示す構成は、他の実施の形態に示した構成を適宜組み合わせて用いることができる。

30

【実施例1】

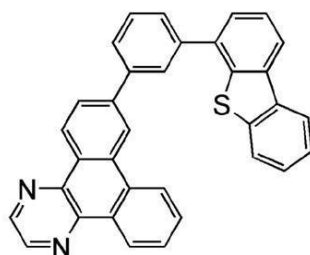
【0205】

《合成例1》

本実施例では、実施の形態1の構造式(101)で表される7-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 7mDBTPDBq-II)の合成方法について具体的に説明する。7mDBTPDBq-II(略称)の構造を以下に示す。

【0206】

【化60】



(101)

7mDBTPDBq-II

40

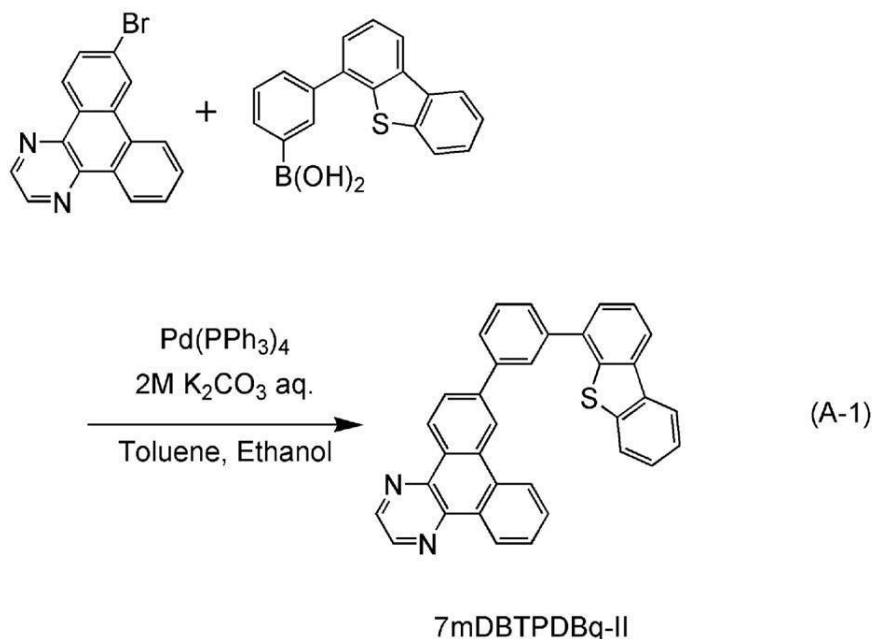
【0207】

50

7mDBTPDBq-I I (略称) の合成スキームを (A-1) に示す。

【0208】

【化61】



【0209】

50 mL三口フラスコに7-ブロモジベンゾ [f, h] キノキサリン 1.2 g (4.0 mmol)、3-(ジベンゾチオフェン-4-イル) フェニルボロン酸 1.3 g (4.3 mmol)、トルエン 20 mL、エタノール 4 mL、2 Mの炭酸カリウム水溶液 4 mLを加えた。この混合物を、減圧下で攪拌することで脱気し、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 93 mg (81 μmol)を加えた。この混合物を窒素気流下、80℃で7時間攪拌した。所定時間経過後、得られた混合物に水を加え、水層から有機物をトルエンにより抽出した。得られた抽出溶液と有機層とを合わせ水、飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムにより乾燥した。この混合物を自然濾過し、濾液を濃縮して固体を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:トルエン)により精製し、さらにトルエンにより再結晶したところ、目的物の淡黄色粉末を収量 1.4 g、収率 61%で得た。

【0210】

得られた目的物の淡黄色粉末 1.4 gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力 2.5 Pa、アルゴン流量 5 mL/minの条件で、目的物を 255℃で加熱して行った。昇華精製後、目的物の淡黄色粉末を収量 0.60 g、回収率 42%で得た。

【0211】

核磁気共鳴法 (^1H NMR) によって、この化合物が目的物である 7-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 7mDBTPDBq-I I) であることを確認した。

【0212】

得られた化合物の ^1H NMRデータを以下に示す。

^1H NMR (CDCl₃, 300 MHz): δ = 7.47–7.51 (m, 2H), 7.62 (d, J = 4.8 Hz, 2H), 7.68–7.92 (m, 6H), 8.08 (dd, J = 8.4 Hz, 1.5 Hz, 1H), 8.19–8.24 (m, 3H), 8.74 (dd, J = 7.8 Hz, 1.5 Hz, 1H), 8.91–8.93 (m, 3H), 9.24 (dd, J = 7.2 Hz, 2.1 Hz, 1H), 9.31 (d, J = 8.4 Hz, 1H).

【0213】

また、 ^1H NMRチャートを図6に示す。なお、図6(B)は、図6(A)における7.0 ppm～9.5 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

【0214】

次に、本実施例で得られた7mDBTPDBq-II(略称)を液体クロマトグラフ質量分析(Liquid Chromatography Mass Spectrometry, 略称: LC/MS分析)によって分析した。

【0215】

LC/MS分析は、ウォーターズ社製Acquity UPLCおよびウォーターズ社製Xevo G2 ToF MSを用いて行った。

10

【0216】

MS分析では、エレクトロスプレーイオン化法(ElectroSpray Ionization, 略称: ESI)によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は3.0 kV、サンプルコーン電圧は30 Vとし、検出はポジティブモードで行った。さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室(コリジョンセル)内でアルゴンガスと衝突させてプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー(コリジョンエネルギー)は70 eVとした。なお、測定する質量範囲は $m/z = 100 \sim 1200$ とした。

【0217】

MS分析した測定結果を図7に示す。図7の結果から、本発明の一態様である7mDBTPDBq-II(略称)は、主として $m/z = 250$ 付近、 $m/z = 258$ 付近、 $m/z = 432$ 付近、及び $m/z = 434$ 付近にプロダクトイオンのピークが、 $m/z = 489$ 付近にプレカーサーイオン由来のピークが、それぞれ検出されることがわかった。ここで、付近とは、LC/MS分析において、水素イオンの存在の有無や同位体の存在によりプロダクトイオンやプレカーサーイオンの数値の変化を表しており、この数値の変化も含めて、同程度の骨格に含まれることを許容範囲とする。なお、図7に示す結果は、7mDBTPDBq-II(略称)に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる7mDBTPDBq-II(略称)を同定する上での重要なデータであるといえる。

20

【0218】

また、 $m/z = 489$ 付近のプレカーサーイオンから、 $m/z = 55$ を差分した $m/z = 434$ 付近にプロダクトイオンのピークが検出される。このピークは、ジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格の2位及び3位が無置換を示す特徴的なプロダクトイオンの一である。

30

【0219】

また、7mDBTPDBq-II(略称)のトルエン溶液の吸収スペクトルを図8(A)に、発光スペクトルを図8(B)にそれぞれ示す。また、7mDBTPDBq-II(略称)の薄膜の吸収スペクトルを図9(A)に、発光スペクトルを図9(B)にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計(日本分光株式会社製、V550型)を用いた。溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着してサンプルを作製して測定を行った。吸収スペクトルに関して、溶液については石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示し、薄膜については石英基板の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示した。図8(A)及び図9(A)において横軸は波長(nm)、縦軸は吸収強度(任意単位)を表し、図8(B)及び図9(B)において横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。トルエン溶液の場合では304及び363 nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは、372及び389 nm(励起波長360 nm)であった。また、薄膜の場合では246、263、312、335、350及び371 nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは413 nm(励起波長371 nm)であった。

40

【実施例2】

50

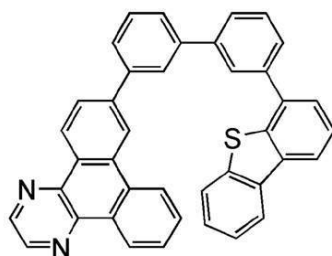
【0220】

《合成例2》

本実施例では、実施の形態1の構造式(109)で表される7-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)ピフェニル-3-イル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 7mDBTBPD Bq-I I)の合成方法について具体的に説明する。7mDBTBPD Bq-I I (略称)の構造を以下に示す。

【0221】

【化62】



(109)

7mDBTBPD Bq-II

10

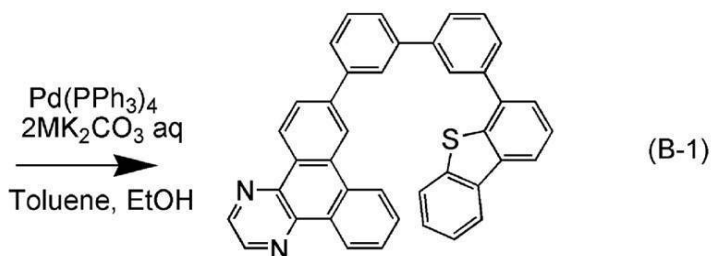
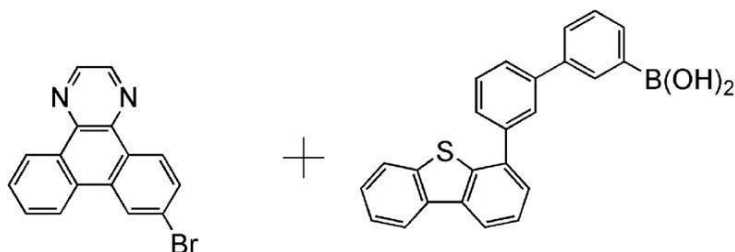
【0222】

7mDBTBPD Bq-I I (略称)の合成スキームを(B-1)に示す。

20

【0223】

【化63】



(B-1)

7mDBTBPD Bq-II

30

40

【0224】

100 mL三口フラスコに7-ブロモジベンゾ[f, h]キノキサリン0.71 g (2.3 mmol)、3-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]フェニルボロン酸1.0 g (2.5 mmol)、トルエン30 mL、エタノール3 mL、2 Mの炭酸カリウム水溶液3.5 mLを加えた。この混合物を、減圧下で攪拌することで脱気し、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)53 mg (46 μmol)を加えた。この混合物を窒素気流下、80℃で18時間攪拌した。この混合物に水を加え、系内に析出した固体を吸引濾過し、固体を得た。さ

50

らに、得られた濾液の水層から有機物をトルエンで抽出した。得られた抽出溶液と有機層を合わせて、炭酸水素ナトリウム水溶液と飽和食塩水で洗浄し、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然濾過し、濾液を濃縮して固体を得た。これらの固体のトルエン溶液を、セライト（和光純薬工業株式会社、カタログ番号：531-16855）、アルミナを通して吸引濾過し、濾液を濃縮して固体を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン：ヘキサン＝2：1）で精製し、さらにトルエンにより再結晶したところ、淡黄色粉末を収量0.70 g、収率53%で得た。

【0225】

得られた淡黄色粉末0.70 gをトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力3.1 Pa、アルゴン流量5 mL/minの条件で、淡黄色粉末を280℃で20時間加熱して行った。昇華精製後、目的物の淡黄色粉末を収量0.62 g、回収率88%で得た。

【0226】

核磁気共鳴法（ ^1H NMR）によって、この化合物が目的物である7-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル-3-イル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン（略称：7mDBTBPD Bq-I I）であることを確認した。

【0227】

得られた化合物の ^1H NMRデータを以下に示す。

^1H NMR (CDCl₃, 300 MHz) : δ = 7.42–7.51 (m, 2H), 7.58–7.69 (m, 4H), 7.74–7.85 (m, 7H), 8.05 (dd, J = 8.1 Hz, 1.5 Hz, 1H), 8.12–8.13 (m, 2H), 8.17–8.22 (m, 2H), 8.73–8.76 (m, 1H), 8.90–8.93 (m, 3H), 9.23–9.28 (m, 1H), 9.31 (d, J = 8.4 Hz, 1H).

【0228】

また、 ^1H NMRチャートを図10に示す。なお、図10(B)は、図10(A)における7.0 ppm～9.5 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

【0229】

次に、本実施例で得られた7mDBTBPD Bq-I I（略称）を液体クロマトグラフ質量分析（LC/MS分析）によって分析した。

【0230】

LC/MS分析は、ウォータース社製Acquity UPLCおよびウォータース社製Xevo G2 ToF MSを用いて行った。

【0231】

MS分析では、エレクトロスプレーイオン化法（ESI）によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は3.0 kV、サンプルコーン電圧は30 Vとし、検出はポジティブモードで行った。さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室（コリジョンセル）内でアルゴンガスと衝突させてプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー（コリジョンエネルギー）は70 eVとした。なお、測定する質量範囲は $m/z = 100 \sim 1200$ とした。

【0232】

MS分析した測定結果を図11に示す。図11の結果から、本発明の一態様である7mDBTBPD Bq-I I（略称）は、主として $m/z = 258$ 付近、 $m/z = 305$ 付近、及び $m/z = 510$ 付近にプロダクトイオンのピークが、 $m/z = 565$ 付近にプレカーサーイオン由来のピークが、それぞれ検出されることがわかった。ここで、付近とは、LC/MS分析において、水素イオンの存在の有無や同位体の存在によりプロダクトイオンやプレカーサーイオンの数値の変化を表しており、この数値の変化も含めて、同程度の骨格に含まれることを許容範囲とする。なお、図11に示す結果は、7mDBTBPD Bq-I I（略称）に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる7mDBTBPD Bq-I I（略称）を同定する上での重要なデータであるといえる。

【0233】

また、 $m/z = 565$ 付近のプレカーサーイオンから、 $m/z = 55$ を差分した $m/z = 510$ 付近にプロダクトイオンのピークが検出される。このピークは、ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の j と d の結合が切れ、1 位の窒素から 4 位の窒素まで ($\text{NC}_2\text{H}_2\text{N}$) がジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格から外れたプロダクトイオンを示唆している。つまりこのピークは、ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の 2 位及び 3 位が無置換であることを示す特徴的なプロダクトイオンの一である。

【0234】

また、7mDBTPDBq-II (略称) のトルエン溶液の吸収スペクトルを図 12 (A) に、発光スペクトルを図 12 (B) にそれぞれ示す。また、7mDBTPDBq-II の薄膜の吸収スペクトルを図 13 (A) に、発光スペクトルを図 13 (B) にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計 (日本分光株式会社製、V550 型) を用いた。溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着してサンプルを作製して測定を行った。吸収スペクトルに関して、溶液については石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示し、薄膜については石英基板の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示した。図 12 (A) 及び図 13 (A) において横軸は波長 (nm)、縦軸は吸収強度 (任意単位) を表し、図 12 (B) 及び図 13 (B) において横軸は波長 (nm)、縦軸は発光強度 (任意単位) を表す。トルエン溶液の場合では 281、303 及び 363 nm 付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは、372 及び 387 nm (励起波長 364 nm) であった。また、薄膜の場合では 247、260、312、331、351 及び 370 nm 付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは 408 nm (励起波長 370 nm) であった。

【実施例 3】

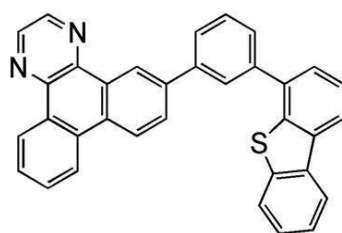
【0235】

《合成例 3》

本実施例では、実施の形態 1 の構造式 (701) で表される 6-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 6mDBTPDBq-II) の合成方法について具体的に説明する。6mDBTPDBq-II (略称) の構造を以下に示す。

【0236】

【化 64】



(701)

6mDBTPDBq-II

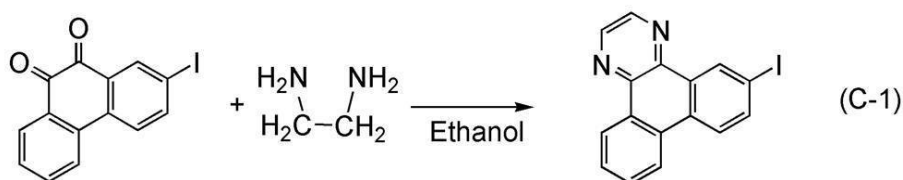
【0237】

《ステップ 1: 6-ヨードジベンゾ [f, h] キノキサリンの合成法》

ステップ 1 の合成スキームを (C-1) に示す。

【0238】

【化 65】



(C-1)

10

20

30

40

50

【0239】

200 mL三口フラスコにて、2-ヨード-9,10-フェナントレンジオン10.6 g (32 mmol)、エチレンジアミン3.7 g (62 mmol)、及びエタノール100 mLを窒素雰囲気下、5時間還流させながら加熱攪拌し、反応させた。反応後、この反応混合液を濾過し、水、トルエンの順ですすいだ。得られたろ物について、シリカゲルカラムクロマトグラフィーによる精製を行った。このとき、クロマトグラフィーの展開溶媒として、トルエンとヘキサンの混合溶液を用いた。得られたフラクションを濃縮し、トルエンを加えて超音波をかけたのち、再結晶したところ、目的物の白色粉末を収量3.0 g、収率26%で得た。

【0240】

10

上記ステップ1で得られた化合物を核磁気共鳴法 (^1H NMR) により測定した。以下に測定データを示す。

【0241】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): δ (ppm) = 7.77–7.82 (m, 2H), 8.07 (dd, $J=9.0\text{ Hz}$, $J=2.1\text{ Hz}$, 1H), 8.34 (d, $J=8.7\text{ Hz}$, 1H), 8.68 (dd, $J=7.2\text{ Hz}$, $J=2.1\text{ Hz}$, 1H), 8.92 (dd, $J=6.3\text{ Hz}$, $J=1.8\text{ Hz}$, 2H), 9.22 (dd, $J=7.2\text{ Hz}$, $J=1.5\text{ Hz}$, 1H), 9.59 (d, $J=1.5\text{ Hz}$, 1H)。

【0242】

また、 ^1H NMRチャートを図14 (A) (B) に示す。なお、図14 (B) は、図14 (A) における7.5 ppm～10.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。測定結果から、目的物である6-ヨードジベンゾ [f, h] キノキサリンが得られたことを確認した。

20

【0243】

上記化合物の分子量を、GC/MS検出器 (Thermo Fisher製、ITQ1100イオントラップ型GCMSシステム) により測定した。これにより、分子量481.8 (モードはEI+) をメインとするピークを検出し、目的物の6-ヨードジベンゾ [f, h] キノキサリンが得られたことを確認した。

【0244】

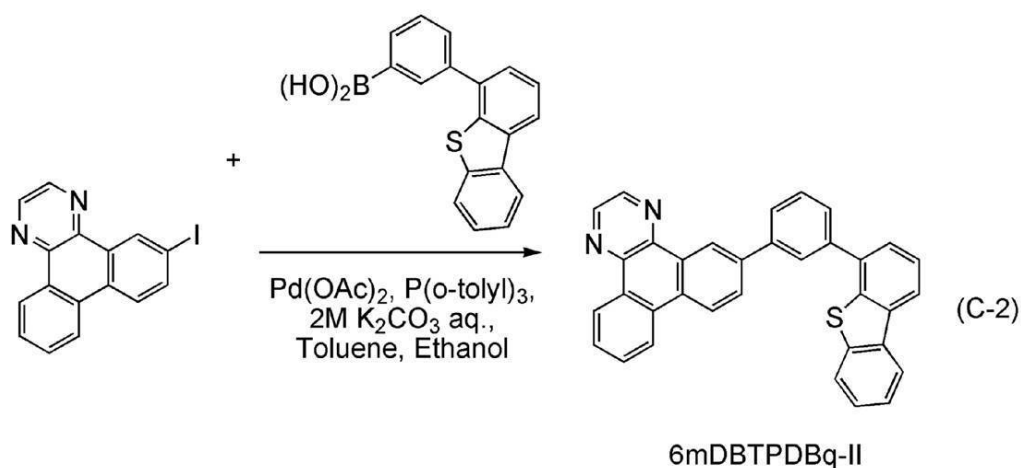
《ステップ2: 6-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 6mDBTPDBq-II) の合成法》

30

ステップ2の合成スキームを (C-2) に示す。

【0245】

【化66】



40

【0246】

200 mL三口フラスコにて、6-ヨードジベンゾ [f, h] キノキサリン1.1 g (3.0 mmol)、3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニルボロン酸1.0 g (

50

3. 3 mmol)、酢酸パラジウム (II) 6. 0 mg (30 μ mol)、トリ (オルトトリル) ホスフィン 9. 0 mg (30 μ mol)、トルエン 30 mL、エタノール 3 mL、及び 2 mol/L 炭酸カリウム水溶液 3 mL の混合物を、減圧下で攪拌しながら脱気した後、窒素雰囲気下、85 $^{\circ}$ C で 40 時間加熱攪拌し、反応させた。

【0247】

反応後、この反応混合液を濾過し、水、トルエンの順ですすいだ。得られたろ物について、シリカゲルカラムクロマトグラフィーによる精製を行った。このとき、クロマトグラフィーの展開溶媒として、トルエンを用いた。得られたフラクションを濃縮し、トルエンを加えて超音波をかけたのち、再結晶したところ、目的物の淡黄色粉末を収量 1. 1 g、収率 75% で得た。

10

【0248】

シリカゲル薄層クロマトグラフィー (TLC) での R_f 値 (展開溶媒 酢酸エチル：ヘキサン = 1 : 5) は、目的物は 0. 33、6-ヨードジベンゾ [f, h] キノキサリンは 0. 72 だった。

【0249】

核磁気共鳴法 (^1H NMR) によって、上記ステップ 2 で得られた化合物が目的物である 6- [3- (ジベンゾチオフェン-4-イル) フェニル] ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称：6mDBTPDBq-II) であることを確認した。

【0250】

得られた化合物の ^1H NMR データを以下に示す。

20

^1H NMR (CDCl₃, 300 MHz) : δ (ppm) = 7. 46–7. 48 (m, 2H), 7. 59–7. 86 (m, 7H), 7. 95 (d, J = 7. 8 Hz, 1H), 8. 14–8. 23 (m, 4H), 8. 66 (d, J = 7. 8 Hz, 1H), 8. 73 (d, J = 8. 7 Hz, 1H), 8. 91 (s, 2H), 9. 26 (d, J = 8. 4 Hz, 1H), 9. 59 (s, 1H)。

【0251】

また、 ^1H NMR チャートを図 15 (A) (B) に示す。なお、図 15 (B) は、図 15 (A) における 7. 0 ppm ~ 10. 0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。測定結果から、目的物である 6mDBTPDBq-II (略称) が得られたことを確認した。

30

【0252】

次に、本実施例で得られた 6mDBTPDBq-II (略称) を液体クロマトグラフ質量分析 (LC/MS 分析) によって分析した。

【0253】

LC/MS 分析は、ウォーターズ社製 Acquity UPLC およびウォーターズ社製 Xevo G2 ToF MS を用いて行った。

【0254】

MS 分析では、エレクトロスプレーイオン化法 (ESI) によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は 3. 0 kV、サンプルコーン電圧は 30 V とし、検出はポジティブモードで行った。さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室 (コリジョンセル) 内でアルゴンガスと衝突させてプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー (コリジョンエネルギー) は 70 eV とした。なお、測定する質量範囲は $m/z = 100 \sim 1200$ とした。

40

【0255】

MS 分析した測定結果を図 16 に示す。図 16 の結果から、本発明の一態様である 6mDBTPDBq-II (略称) は、主として $m/z = 258$ 付近、及び $m/z = 434$ 付近にプロダクトイオンのピークが、 $m/z = 489$ 付近にプレカーサーイオン由来のピークが、それぞれ検出されることがわかった。ここで、付近とは、LC/MS 分析において、水素イオンの存在の有無や同位体の存在によりプロダクトイオンやプレカーサーイオンの数値の変化を表しており、この数値の変化も含めて、同程度の骨格に含まれることを許

50

容範囲とする。なお、図16に示す結果は、6mDBTPDBq-I I（略称）に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる6mDBTPDBq-I I（略称）を同定する上での重要なデータであるといえる。

【0256】

また、 $m/z = 489$ 付近のプレカーサーイオンから、 $m/z = 55$ を差分した $m/z = 434$ 付近にプロダクトイオンのピークが検出される。このピークは、ジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格のjとdの結合が切れ、1位の窒素から4位の窒素まで($\text{NC}_2\text{H}_2\text{N}$)がジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格から外れたプロダクトイオンを示唆している。つまりこのピークは、ジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格の2位及び3位が無置換であることを示す特徴的なプロダクトイオンの一である。

10

【0257】

また、上記化合物の分子量を、TOF-MS検出器(Waters製、Waters Micromass LCT Premier)により測定した。アセトニトリルと、0.1%蟻酸水の混合液(混合比は80:20(体積比))を溶媒として用いた。これにより、分子量562(モードはES+)をメインとするピークを検出し、目的物の6mDBTPDBq-I I(略称)が得られたことを確認した。

【0258】

また、6mDBTPDBq-I I(略称)のトルエン溶液の吸収スペクトルを図17(A)に、発光スペクトルを図17(B)にそれぞれ示す。また、6mDBTPDBq-I I(略称)の薄膜の吸収スペクトルを図18(A)に、発光スペクトルを図18(B)にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計(日本分光株式会社製、V550型)を用いた。溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着してサンプルを作製して測定を行った。吸収スペクトルに関して、溶液については石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示し、薄膜については石英基板の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示した。図17(A)及び図18(A)において横軸は波長(nm)、縦軸は吸収強度(任意単位)を表す。図17(B)及び図18(B)において横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。トルエン溶液の場合では358nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは、395nm(励起波長290nm)であった。また、薄膜の場合では365nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは429nm(励起波長366nm)であった。

20

30

【実施例4】

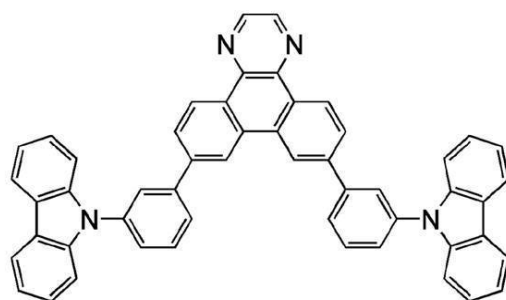
【0259】

<合成例4>

本実施例では、下記構造式(818)に示される7,10-ビス[3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 7,10mCzP2DBq)の合成方法について説明する。

【0260】

【化67】



(818)

7,10mCzP2DBq

40

【0261】

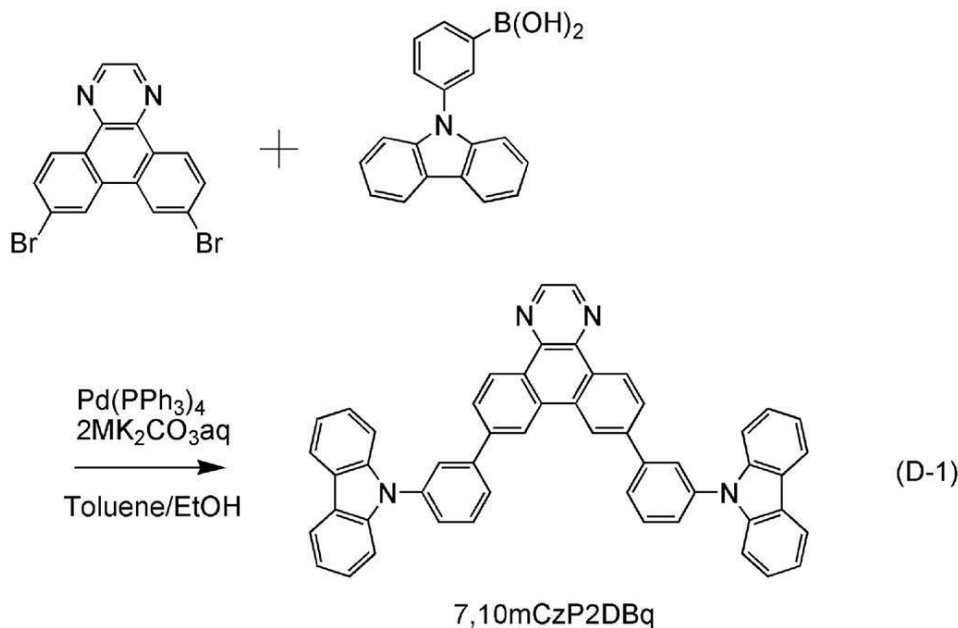
≪7,10mCzP2DBq(略称)の合成≫

50

7, 10mCzP2DBq (略称) の合成スキームを (D-1) に示す。

【0262】

【化68】



【0263】

100 mL三口フラスコに7, 10-ジブロモジベンゾ [f, h] キノキサリン0.94 g (2.4 mmol)、3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニルボロン酸1.5 g (5.2 mmol)、トルエン56 mL、エタノール6 mL、2 Mの炭酸カリウム水溶液4.0 mLを加えた。この混合物を、減圧下で撹拌することで脱気し、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)64 mg (0.06 mmol)を加えた。この混合物を窒素気流下、80℃で8時間撹拌した。所定時間経過後、析出した固体を濾別し、白色固体を得た。得られた固体のトルエン溶液をアルミナ、セライトを通して吸引濾過し、得られた濾液を濃縮して白色固体を得た。得られた固体を、トルエンを用いて再結晶し、白色固体を得た。エタノールを加えて超音波を照射し、固体を吸引濾過にて濾取したところ、固体粉末を収量0.75 g、収率44%で得た。

【0264】

得られた固体粉末0.75 gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力4.2 Pa、アルゴン流量5.0 mL/minの条件で、粉末を330℃で加熱して行った。昇華精製後、目的物の白色粉末を収量0.54 g、回収率72%で得た。

【0265】

核磁気共鳴法 (^1H NMR) によって、この化合物が目的物である7, 10-ビス [3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 7, 10mCzP2DBq) であることを確認した。

【0266】

得られた物質の ^1H NMR データを以下に示す。

^1H NMR (CDCl_3 , 500 MHz): δ (ppm) = 7.23–7.29 (m, 4H), 7.42 (t, J = 7.5 Hz, 4H), 7.54 (d, J = 8.0 Hz, 4H), 7.66 (d, J = 8.6 Hz, 2H), 7.79 (t, J = 8.1 Hz, 2H), 7.93 (d, J = 7.5 Hz, 2H), 8.03–8.07 (m, 4H), 8.18 (d, J = 7.5 Hz, 4H), 8.94–8.95 (m, 4H), 9.35 (d, J = 8.1 Hz, 2H)。

【0267】

10

20

30

40

50

また、 ^1H NMRチャートを図19に示す。なお、図19(B)は、図19(A)における6.00 ppm~10.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

【0268】

次に、本実施例で得られた7, 10mCzP2DBq (略称)を液体クロマトグラフ質量分析(LC/MS分析)によって分析した。

【0269】

LC/MS分析は、ウォーターズ社製Acquity UPLCおよびウォーターズ社製Xevo G2 ToF MSを用いて行った。

【0270】

MS分析では、エレクトロスプレーイオン化法(ESI)によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は3.0 kV、サンプルコーン電圧は30 Vとし、検出はポジティブモードで行った。さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室(コリジョンセル)内でアルゴンガスと衝突させてプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー(コリジョンエネルギー)は70 eVとした。なお、測定する質量範囲は $m/z = 100 \sim 1200$ とした。

【0271】

MS分析した測定結果を図20(A)、(B)に示す。なお、図20(A)は、横軸が $m/z = 100 \sim 1200$ の範囲を、縦軸が強度(任意単位)を、それぞれ表す。また、図20(B)は、図20(A)に示す横軸の $m/z = 650 \sim 750$ の範囲を拡大し、さらに図20(A)に示す縦軸を拡大した図である。図20(A)、(B)の結果から、本発明の一態様である7, 10mCzP2DBq (略称)は、主として $m/z = 547$ 付近、 $m/z = 658$ 付近、 $m/z = 672$ 付近、 $m/z = 686$ 付近、及び $m/z = 697$ 付近にプロダクトイオンのピークが、 $m/z = 713$ 付近にプレカーサーイオン由来のピークが、それぞれ検出されることがわかった。ここで、付近とは、LC/MS分析において、水素イオンの存在の有無や同位体の存在によりプロダクトイオンやプレカーサーイオンの数値の変化を表しており、この数値の変化も含めて、同程度の骨格に含まれることを許容範囲とする。なお、図20に示す結果は、7, 10mCzP2DBq (略称)に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる7, 10mCzP2DBq (略称)を同定する上での重要なデータであるといえる。

【0272】

また、 $m/z = 713$ 付近のプレカーサーイオンから、 $m/z = 55$ を差分した $m/z = 658$ 付近にプロダクトイオンのピークが検出される。このピークは、ジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格のjとdの結合が切れ、1位の窒素から4位の窒素まで($\text{NC}_2\text{H}_2\text{N}$)がジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格から外れたプロダクトイオンを示唆している。つまりこのピークは、ジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格の2位及び3位が無置換であることを示す特徴的なプロダクトイオンの一である。

【0273】

また、7, 10mCzP2DBq (略称)のトルエン溶液の吸収スペクトルを図21(A)に、発光スペクトルを図21(B)にそれぞれ示す。また、7, 10mCzP2DBq (略称)の薄膜の吸収スペクトルを図22(A)に、発光スペクトルを図22(B)にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計(日本分光株式会社製、V550型)を用いた。溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着してサンプルを作製して測定を行った。吸収スペクトルに関して、溶液については石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示し、薄膜については石英基板の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示した。図21及び図22において横軸は波長(nm)、縦軸は強度(任意単位)を表す。トルエン溶液の場合では369 nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは、379 nm(励起波長369 nm)であった。また、薄膜の場合では378 nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは432 nm(励起波長342 nm)であった。

【実施例5】

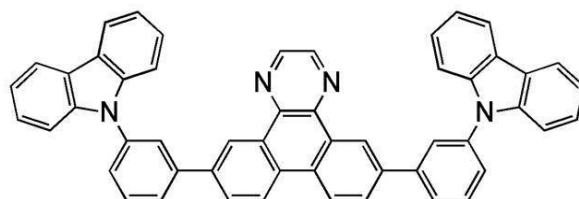
【0274】

<合成例5>

本実施例では、下記構造式(802)に示される6,11-ビス[3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン(略称:6,11mCzP2DBq)の合成方法について説明する。

【0275】

【化69】



(802)

6,11mCzP2DBq

10

【0276】

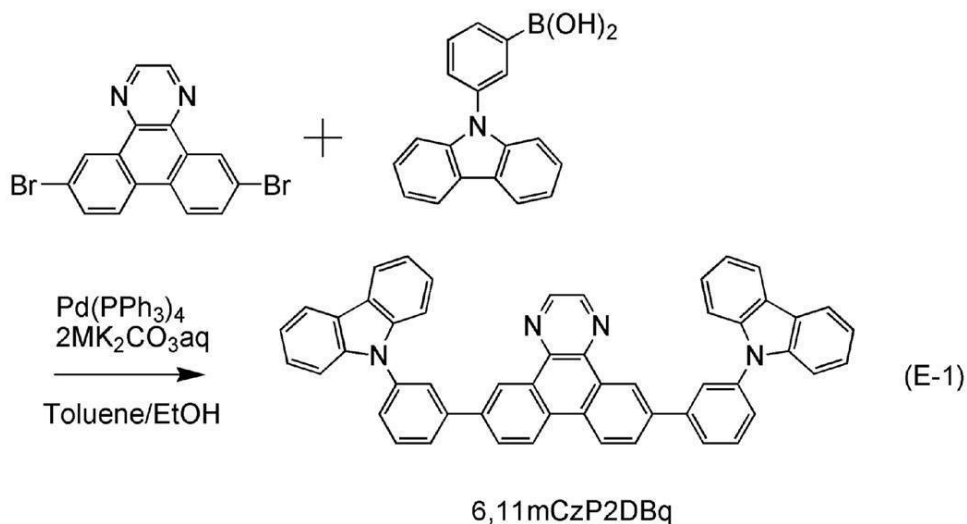
≪6,11mCzP2DBq(略称)の合成≫

6,11mCzP2DBq(略称)の合成スキームを(E-1)に示す。

【0277】

【化70】

20



30

【0278】

100mL三口フラスコに6,11-ジブロモジベンゾ[f,h]キノキサリン1.1g(2.8mmol)、3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニルボロン酸1.7g(5.9mmol)、トルエン56mL、エタノール6mL、2Mの炭酸カリウム水溶液4.0mLを加えた。この混合物を、減圧下で撹拌することで脱気し、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)64mg(0.06mmol)を加えた。この混合物を窒素気流下、80℃で8時間撹拌した。所定時間経過後、析出した固体を濾別し、白色固体を得た。得られた固体のトルエン溶液をアルミナ、セライトを通して吸引濾過し、得られた濾液を濃縮して白色固体を得た。得られた固体を、トルエンを用いて再結晶し、白色固体を得た。エタノールを加えて超音波を照射し、固体を吸引濾過にて濾取したところ、固体粉末を収量1.1g、収率55%で得た。

40

【0279】

得られた固体粉末0.84gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華

50

精製は、圧力4．2 Pa、アルゴン流量5．0 mL/minの条件で、粉末を365℃で加熱して行った。昇華精製後、目的物の白色粉末を収量0．64 g、回収率76%で得た。

【0280】

核磁気共鳴法 (^1H NMR) によって、この化合物が目的物である6, 11-ビス[3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 6, 11mCzP2DBq)であることを確認した。

【0281】

得られた物質の ^1H NMRデータを以下に示す。

^1H NMR (CDCl₃, 500 MHz): δ (ppm) = 7.32 (t, J = 6.9 Hz, 4H), 7.45 (t, J = 7.2 Hz, 4H), 7.53 (d, J = 8.1 Hz, 4H), 7.64 (d, J = 8.0 Hz, 2H), 7.78 (t, J = 7.8 Hz, 2H), 8.01 (d, J = 7.5 Hz, 2H), 8.09 (s, 2H), 8.13 (dd, J = 8.6 Hz, 2.3 Hz, 2H), 8.19 (d, J = 7.5 Hz, 4H), 8.76 (d, J = 8.6 Hz, 2H), 8.92 (s, 2H), 9.56 (d, J = 2.3 Hz, 2H)。

【0282】

また、 ^1H NMRチャートを図23に示す。なお、図23(B)は、図23(A)における7.00 ppm~10.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

【0283】

次に、本実施例で得られた6, 11mCzP2DBq(略称)を液体クロマトグラフ質量分析(LC/MS分析)によって分析した。

【0284】

LC/MS分析は、ウォーターズ社製Acquity UPLCおよびウォーターズ社製Xevo G2 ToF MSを用いて行った。

【0285】

MS分析では、エレクトロスプレーイオン化法(ESI)によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は3.0 kV、サンプルコーン電圧は30 Vとし、検出はポジティブモードで行った。さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室(コリジョンセル)内でアルゴンガスと衝突させてプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー(コリジョンエネルギー)は70 eVとした。なお、測定する質量範囲は m/z = 100~1200とした。

【0286】

MS分析した測定結果を図24(A)、(B)に示す。なお、図24(A)は、横軸が m/z = 100~1200の範囲を、縦軸が強度(任意単位)を、それぞれ表す。また、図24(B)は、図24(A)に示す横軸の m/z = 600~800の範囲を拡大し、さらに図24(A)に示す縦軸を拡大した図である。図24(A)、(B)の結果から、本発明の一態様である6, 11mCzP2DBq(略称)は、主として m/z = 547付近、 m/z = 635付近、 m/z = 658付近、 m/z = 672付近、 m/z = 686付近、及び m/z = 697付近にプロダクトイオンのピークが、 m/z = 713付近にプレカーサーイオン由来のピークが、それぞれ検出されることがわかった。ここで、付近とは、LC/MS分析において、水素イオンの存在の有無や同位体の存在によりプロダクトイオンやプレカーサーイオンの数値の変化を表しており、この数値の変化も含めて、同程度の骨格に含まれることを許容範囲とする。なお、図24に示す結果は、6, 11mCzP2DBq(略称)に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる6, 11mCzP2DBq(略称)を同定する上での重要なデータであるといえる。

【0287】

また、 m/z = 713付近のプレカーサーイオンから、 m/z = 55を差分した m/z = 658付近にプロダクトイオンのピークが検出される。このピークは、ジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格のjとdの結合が切れ、1位の窒素から4位の窒素まで(NC₂H

₂N) がジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格から外れたプロダクトイオンを示唆している。つまりこのピークは、ジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の 2 位及び 3 位が無置換であることを示す特徴的なプロダクトイオンの一である。

【0288】

また、6, 11mCzP2DBq (略称) のトルエン溶液の吸収スペクトルを図 25 (A) に、発光スペクトルを図 25 (B) にそれぞれ示す。また、6, 11mCzP2DBq (略称) の薄膜の吸収スペクトルを図 26 (A) に、発光スペクトルを図 26 (B) にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計 (日本分光株式会社製、V550 型) を用いた。溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着してサンプルを作製して測定を行った。吸収スペクトルに関して、溶液については石英セルにトルエンのみを 10 入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示し、薄膜については石英基板の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示した。図 25 及び図 26 において横軸は波長 (nm)、縦軸は強度 (任意単位) を表す。トルエン溶液の場合では 315 nm 付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは、411 nm (励起波長 315 nm) であった。また、薄膜の場合では 367 nm 付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは 434 nm (励起波長 369 nm) であった。

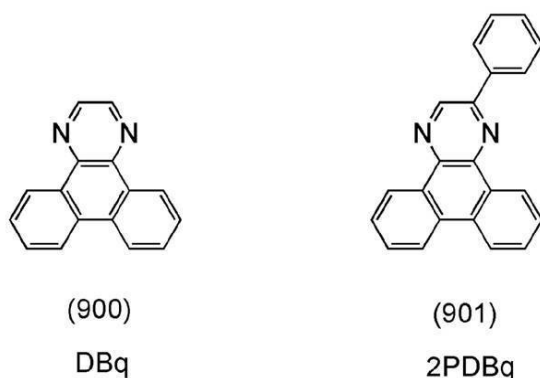
【実施例 6】

【0289】

本実施例では、下記構造式 (900) に示される 2 位及び 3 位が無置換のジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の一態様であるジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: DBq) 20 と、下記構造式 (901) に示される 2 位に置換基を有するジベンゾ [f, h] キノキサリン骨格の一態様である 2-フェニルジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 2PDBq) と、を液体クロマトグラフ質量分析 (LC/MS 分析) によって分析した結果について説明する。

【0290】

【化 71】



【0291】

構造式 (900)、及び構造式 (901) に示す物質について、LC/MS 分析を行った。なお、LC/MS 分析は、ウォーターズ社製 Acquity UPLC およびウォーターズ社製 Xevo G2 ToF MS を用いて行った。 40

【0292】

MS 分析では、エレクトロスプレーイオン化法 (ESI) によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は 3.0 kV、サンプルコーン電圧は 30 V とし、検出はポジティブモードで行った。さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室 (コリジョンセル) 内でアルゴンガスと衝突させてプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー (コリジョンエネルギー) は 70 eV とした。なお、測定する質量範囲は $m/z = 100 \sim 1200$ とした。

【0293】

まず、構造式 (900) に示す DBq (略称) の MS 分析した測定結果を図 48 (A) 50

、(B)に示す。なお、図48(A)は、横軸が $m/z = 100 \sim 1200$ の範囲を、縦軸が強度(任意単位)を、それぞれ表す。図48(B)は、横軸が $m/z = 100 \sim 400$ の範囲を、縦軸が強度(任意単位)を、それぞれ表す。図48(A)、(B)の結果から、DBq(略称)は、主として $m/z = 151$ 付近、及び $m/z = 176$ 付近にプロダクトイオンのピークが、 $m/z = 231$ 付近にプレカーサーイオン由来のピークが、それぞれ検出されることがわかった。ここで、付近とは、LC/MS分析において、水素イオンの存在の有無や同位体の存在によりプロダクトイオンやプレカーサーイオンの数値の変化を表しており、この数値の変化も含めて、同程度の骨格に含まれることを許容範囲とする。なお、図48(A)、(B)に示す結果は、DBq(略称)に由来する特徴的な結果である。

10

【0294】

次に、構造式(901)に示す2PDBq(略称)のMS分析した測定結果を図49(A)、(B)に示す。なお、図49(A)は、横軸が $m/z = 100 \sim 1200$ の範囲を、縦軸が強度(任意単位)を、それぞれ表す。図49(B)は、横軸が $m/z = 100 \sim 400$ の範囲を、縦軸が強度(任意単位)を、それぞれ表す。図49(A)、(B)の結果から、2PDBq(略称)は、主として $m/z = 151$ 付近、 $m/z = 176$ 付近、及び $m/z = 202$ 付近にプロダクトイオンのピークが、 $m/z = 307$ 付近にプレカーサーイオン由来のピークが、それぞれ検出されることがわかった。ここで、付近とは、LC/MS分析において、水素イオンの存在の有無や同位体の存在によりプロダクトイオンやプレカーサーイオンの数値の変化を表しており、この数値の変化も含めて、同程度の骨格に含まれることを許容範囲とする。なお、図49(A)、(B)に示す結果は、2PDBq(略称)に由来する特徴的な結果である。

20

【0295】

ここで、図48(A)、(B)に示すDBq(略称)のLC/MS分析の測定結果と、図49(A)、(B)に示す2PDBq(略称)のLC/MS分析の測定結果と、を比較すると、DBq(略称)は、 $m/z = 231$ 付近のプレカーサーイオンから、 $m/z = 55$ を差分した $m/z = 176$ 付近にプロダクトイオンのピークが検出された。一方、2PDBq(略称)は、 $m/z = 307$ 付近のプレカーサーイオンから、 $m/z = 55$ を差分した $m/z = 252$ 付近には目立ったピークが確認されないが、 $m/z = 131$ を差分した $m/z = 176$ 付近にプロダクトイオンのピークが検出された。これは、DBq(略称)はジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格のjとdの結合が切れ、1位の窒素から4位の窒素まで($\text{NC}_2\text{H}_2\text{N}$)がジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格から外れたプロダクトイオンが検出されたことに対し、2PDBq(略称)は、ジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格のjとdの結合が切れ、2位にフェニルを有する1位の窒素から4位の窒素まで($\text{NC}_2\text{H}_2(\text{C}_6\text{H}_5)\text{N}$)がジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格から外れたプロダクトイオンが検出された結果を示唆している。これは、混合物中に含まれるジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格の2位及び3位に置換基の有無を特定する際に、重要なデータであるといえる。

30

【0296】

以上のように2位及び3位が無置換のジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格を含む有機化合物であると、プレカーサーイオンから、 $m/z = 55$ を差分した位置に2位及び3位が無置換のジベンゾ[f, h]キノキサリン骨格由来のプロダクトイオンが検出される。したがって、本実施例に用いた、DBq(略称)及び2PDBq(略称)のLC/MS分析を行うことで、実施例1～5に示す本発明の一態様の有機化合物を用いた発光素子を、LC/MS分析を用いて分析することにより、混合物中の有機化合物の骨格を特定できると示唆された。

40

【実施例7】

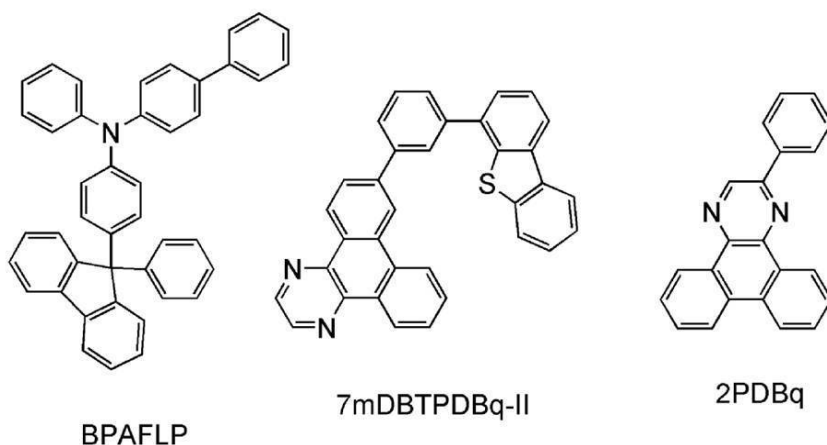
【0297】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図27を用いて説明する。本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

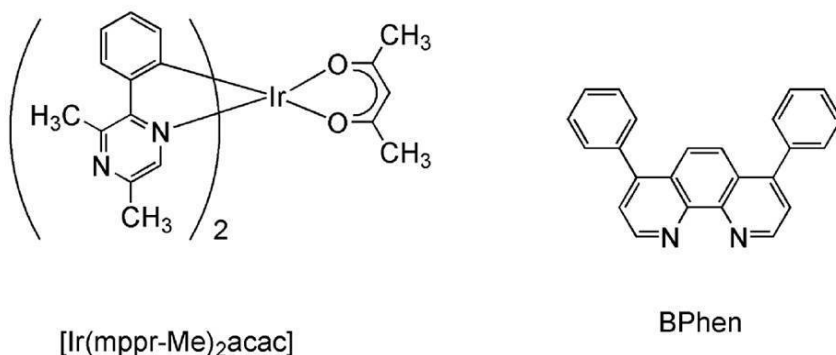
50

【0298】

【化72】



10



20

【0299】

以下に、本実施例の発光素子1及び比較発光素子2の作製方法を示す。

【0300】

(発光素子1)

まず、基板1100上に、珪素または酸化珪素を含有した酸化インジウム－酸化スズ化合物 (ITO-SiO₂、以下ITSOと略記する。) をスパッタリング法にて成膜し、第1の電極1101を形成した。なお、用いたターゲットの組成は、In₂O₃:SnO₂:SiO₂=85:10:5 [重量%] とした。また、第1の電極1101の膜厚は、110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。ここで、第1の電極1101は、発光素子の陽極として機能する電極である。

30

【0301】

基板1100上に発光素子を形成するための前処理として、基板表面を水で洗浄し、200℃で1時間焼成した後、UVオゾン処理を370秒行った。

【0302】

その後、10⁻⁴Pa程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において、170℃で30分間の真空焼成を行った後、基板1100を30分程度放冷した。

40

【0303】

次に、第1の電極1101が形成された面が下方となるように、第1の電極1101が形成された基板1100を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、10⁻⁴Pa程度まで減圧した後、第1の電極1101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン (略称: BPAFLP) と酸化モリブデンを共蒸着することで、正孔注入層1111を形成した。その膜厚は、40nmとし、BPAFLP (略称) と酸化モリブデンの比率は、重量比で

50

4：2（＝BPAFLP：酸化モリブデン）となるように調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で、複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法である。

【0304】

次に、正孔注入層1111上に、BPAFLP（略称）を20nmの膜厚となるように成膜し、正孔輸送層1112を形成した。

【0305】

次に、実施例1で合成した7-〔3-（ジベンゾチオフェン-4-イル）フェニル〕ジベンゾ〔f，h〕キノキサリン（略称：7mDBTPDBq-II）及び（アセチルアセトナト）ビス（3，5-ジメチル-2-フェニルピラジナト）イリジウム（III）（略称：〔Ir（mppr-Me）₂（acac）〕）を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。ここで、7mDBTPDBq-II（略称）及び〔Ir（mppr-Me）₂（acac）〕（略称）の重量比は、1：0.06（＝7mDBTPDBq-II：〔Ir（mppr-Me）₂（acac）〕）となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。

【0306】

さらに、発光層1113上に7mDBTPDBq-II（略称）を膜厚10nmとなるように成膜し、第1の電子輸送層1114aを形成した。

【0307】

その後、第1の電子輸送層1114a上にバソフェナントロリン（略称：BPhen）を膜厚20nmとなるように成膜し、第2の電子輸送層1114bを形成した。

【0308】

さらに、第2の電子輸送層1114b上に、フッ化リチウム（LiF）を1nmの膜厚で蒸着し、電子注入層1115を形成した。

【0309】

最後に、陰極として機能する第2の電極1103として、アルミニウムを200nmの膜厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子1を作製した。

【0310】

なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【0311】

（比較発光素子2）

比較発光素子2の発光層1113は、2-フェニルジベンゾ〔f，h〕キノキサリン（略称：2PDBq）及び〔Ir（mppr-Me）₂（acac）〕を共蒸着することで形成した。ここで、2PDBq（略称）及び〔Ir（mppr-Me）₂（acac）〕（略称）の重量比は、1：0.06（＝2PDBq：〔Ir（mppr-Me）₂（acac）〕）となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。

【0312】

さらに、比較発光素子2の第1の電子輸送層1114aは、2PDBq（略称）を膜厚10nmとなるように成膜することで形成した。発光層1113及び第1の電子輸送層1114a以外は発光素子1と同様に作製した。

【0313】

以上により得られた発光素子1及び比較発光素子2の素子構造を表1に示す。

【0314】

【表1】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子1	ITO 110nm	BPAFLP:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	7mDBTPDBq-II:〔Ir(mppr-Me) ₂ (acac)〕 (=1:0.06) 40nm	7mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
比較発光素子2	ITO 110nm	BPAFLP:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2PDBq:〔Ir(mppr-Me) ₂ (acac)〕 (=1:0.06) 40nm	2PDBq 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0315】

発光素子1及び比較発光素子2を、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光素子が大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に80℃にて1時間熱処理）を行った後、これら発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温（25℃に保たれた雰囲気）で行った。

【0316】

発光素子1及び比較発光素子2の電流密度－輝度特性を図28に示す。図28において、横軸は電流密度（mA/cm²）を、縦軸は輝度（cd/m²）を表す。また、電圧－輝度特性を図29に示す。図29において、横軸は電圧（V）を、縦軸は輝度（cd/m²）を表す。また、輝度－電流効率特性を図30に示す。図30において、横軸は輝度（cd/m²）、縦軸は電流効率（cd/A）を表す。また、電圧－電流特性を図31に示す。図31において、横軸は電圧（V）を、縦軸は電流（mA）を表している。また、各発光素子における輝度1000cd/m²付近のときの電圧（V）、電流密度（mA/cm²）、CIE色度座標（x、y）、電流効率（cd/A）、外部量子効率（%）を表2に示す。

【0317】

【表2】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm ²)	色度x 色度y	輝度 (cd/m ²)	電流効率 (cd/A)	外部 量子効率(%)
発光素子1	3.2	2.3	0.54 0.45	670	29	11
比較発光素子2	5.4	50	0.52 0.47	1000	2.0	0.7

【0318】

表2に示す通り、670cd/m²の輝度の時の発光素子1のCIE色度座標は（x，y）＝（0.54，0.45）であった。また、1000cd/m²の輝度の時の比較発光素子2のCIE色度座標は（x，y）＝（0.52，0.47）であった。発光素子1及び比較発光素子2は、それぞれ[Ir(mppr-Me)₂(acac)]（略称）に由来する発光が得られたことがわかった。

【0319】

本実施例で作製した比較発光素子2は、図31からわかるように、発光が開始する電圧（2V程度）よりも低電圧の領域で発光素子1に比べて電流が大きく流れており、また、表2より電流効率が著しく低いことがわかった。これは、比較発光素子2の発光層1113に用いた2PDBq（略称）が結晶化し、電流のリークが発生しているためと考えられる。

【0320】

一方、図28乃至図31から、発光素子1は、駆動電圧が低く、電流効率が高いことがわかる。従って、本発明の一態様を適用した有機化合物は、良好な電圧－輝度特性、及び輝度－電流効率特性の実現に効果があることが確認された。

【0321】

以上示したように、7mDBTPDBq-III（略称）を発光層のホスト材料及び電子輸送層として用いることにより、駆動電圧が低く、電流効率が高い発光素子を作製することができた。

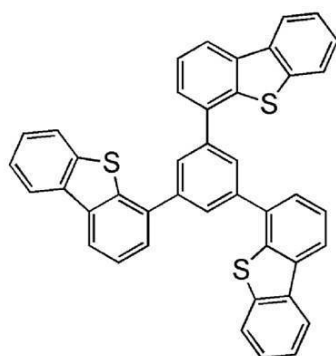
【実施例8】

【0322】

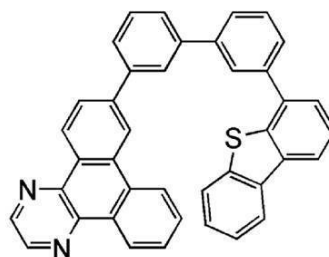
本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図27を用いて説明する。本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。なお、既に示した材料については省略する。

【0323】

【化 7 3】

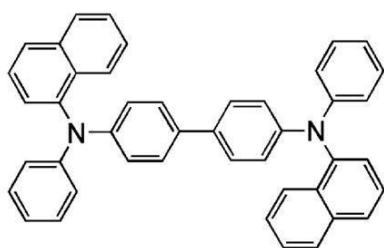


DBT3P-II

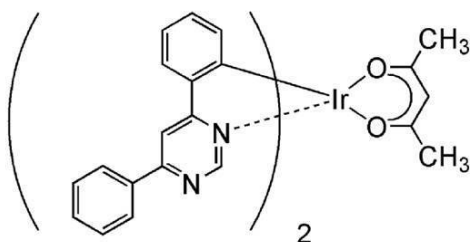


7mDBTBPDBq-II

10



NPB

[Ir(dppm)₂(acac)]

20

【0 3 2 4】

以下に、本実施例の発光素子 3 の作製方法を示す。

【0 3 2 5】

(発光素子 3)

まず、基板 1 1 0 0 上に、珪素または酸化珪素を含有した酸化インジウム－酸化スズ化合物 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 1 1 0 1 を形成した。なお、用いたターゲットの組成は、 $\text{In}_2\text{O}_3 : \text{SnO}_2 : \text{SiO}_2 = 85 : 10 : 5$ [重量 %] とした。また、第 1 の電極 1 1 0 1 の膜厚は、110 nm とし、電極面積は $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ とした。ここで、第 1 の電極 1 1 0 1 は、発光素子の陽極として機能する電極である。

30

【0 3 2 6】

基板 1 1 0 0 上に発光素子を形成するための前処理として、基板表面を水で洗浄し、 200°C で 1 時間焼成した後、UV オゾン処理を 370 秒行った。

【0 3 2 7】

その後、 10^{-4} Pa 程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において、 170°C で 30 分間の真空焼成を行った後、基板 1 1 0 0 を 30 分程度放冷した。

40

【0 3 2 8】

次に、第 1 の電極 1 1 0 1 が形成された面が下方となるように、第 1 の電極 1 1 0 1 が形成された基板 1 1 0 0 を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、 10^{-4} Pa 程度まで減圧した後、第 1 の電極 1 1 0 1 上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、4, 4', 4''-(1, 3, 5-ベンゼントリイル)トリ(ジベンゾチオフェン) (略称: DBT3P-I I) と酸化モリブデンを共蒸着することで、正孔注入層 1 1 1 1 を形成した。その膜厚は、40 nm とし、DBT3P-I I (略称) と酸化モリブデンの比率は、重量比で 4 : 2 (= DBT3P-I I : 酸化モリブデン) となるように調節した。

【0 3 2 9】

50

次に、正孔注入層 1 1 1 1 上に、B P A F L P を 2 0 n m の膜厚となるように成膜し、正孔輸送層 1 1 1 2 を形成した。

【0 3 3 0】

次に、実施例 2 で合成した 7 - [3 ' - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) ビフェニル - 3 - イル] ジベンゾ [f , h] キノキサリン (略称: 7 m D B T B P D B q - I I) 、 4 , 4 ' - ビス [N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ] ビフェニル (略称: N P B) 及び (アセチルアセトナト) ビス (4 , 6 - ジフェニルピリミジナト) イリジウム (I I I) (略称: [I r (d p p m) ₂ (a c a c)]) を共蒸着し、正孔輸送層 1 1 1 2 上に発光層 1 1 1 3 を形成した。ここで、7 m D B T B P D B q - I I (略称)、N P B (略称) 及び [I r (d p p m) ₂ (a c a c)] (略称) の重量比は、0 . 8 : 0 . 2 : 0 . 0 5 (= 7 m D B T B P D B q - I I : N P B : [I r (d p p m) ₂ (a c a c)]) となるように調節した。また、発光層 1 1 1 3 の膜厚は 4 0 n m とした。

10

【0 3 3 1】

さらに、発光層 1 1 1 3 上に 7 m D B T B P D B q - I I (略称) を膜厚 1 0 n m となるように成膜し、第 1 の電子輸送層 1 1 1 4 a を形成した。

【0 3 3 2】

その後、第 1 の電子輸送層 1 1 1 4 a 上に B P h e n (略称) を膜厚 2 0 n m となるように成膜し、第 2 の電子輸送層 1 1 1 4 b を形成した。

【0 3 3 3】

さらに、第 2 の電子輸送層 1 1 1 4 b 上に、L i F を 1 n m の膜厚で蒸着し、電子注入層 1 1 1 5 を形成した。

20

【0 3 3 4】

最後に、陰極として機能する第 2 の電極 1 1 0 3 として、アルミニウムを 2 0 0 n m の膜厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子 3 を作製した。

【0 3 3 5】

なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【0 3 3 6】

以上により得られた発光素子 3 の素子構造を表 3 に示す。

【0 3 3 7】

【表 3】

30

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子 3	ITO 110nm	DBT3P-II:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	7mDBTBPDq-II:NPB:[Ir(dppm) ₂ (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	7mDBTBPDq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0 3 3 8】

発光素子 3 を、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光素子が大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業 (シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に 8 0 ° C にて 1 時間熱処理) を行った後、発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温 (2 5 ° C に保たれた雰囲気) で行った。

40

【0 3 3 9】

発光素子 3 の電流密度 - 輝度特性を図 3 2 に示す。図 3 2 において、横軸は電流密度 (m A / c m ²) を、縦軸は輝度 (c d / m ²) を表す。また、電圧 - 輝度特性を図 3 3 に示す。図 3 3 において、横軸は電圧 (V) を、縦軸は輝度 (c d / m ²) を表す。また、輝度 - 電流効率特性を図 3 4 に示す。図 3 4 において、横軸は輝度 (c d / m ²) 、縦軸は電流効率 (c d / A) を表す。また、電圧 - 電流特性を図 3 5 に示す。図 3 5 において、横軸は電圧 (V) を、縦軸は電流 (m A) を表している。また、発光素子 3 における輝度 8 5 0 c d / m ² のときの電圧 (V) 、電流密度 (m A / c m ²) 、C I E 色度座標 (x , y) 、電流効率 (c d / A) 、外部量子効率 (%) を表 4 に示す。

【0 3 4 0】

50

【表 4】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm ²)	色度 _x	色度 _y	輝度 (cd/m ²)	電流効率 (cd/A)	外部 量子効率(%)
発光素子3	3.0	1.2	0.57	0.43	850	69	28

【0341】

表4に示す通り、850cd/m²の輝度の時の発光素子3のCIE色度座標は(x, y) = (0.57, 0.43)であった。発光素子3は、[Ir(dppm)₂(acac)]に由来する発光が得られたことがわかった。

10

【0342】

図32乃至図35、及び表4から、発光素子3は、駆動電圧が低く、電流効率及び外部量子効率が高いことがわかる。従って、本発明の一態様を適用した有機化合物は、良好な電圧－輝度特性、及び輝度－電流効率特性の実現に効果があることが確認された。

【0343】

以上示したように、7mDBTBPD Bq-I I（略称）を発光層のホスト材料及び電子輸送層として用いることにより、駆動電圧が低く、電流効率及び外部量子効率が高い発光素子を作製することができた。

【0344】

次に、発光素子3の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図36に示す。図36において、縦軸は初期輝度を100%とした時の規格化輝度(%)を示し、横軸は素子の駆動時間(h)を示す。

20

【0345】

信頼性試験は、初期輝度を5000cd/m²に設定し、電流密度一定の条件で発光素子3を駆動した。

【0346】

260時間後の輝度について、発光素子3は、初期輝度の71%を保っていた。

【0347】

以上の結果から、7mDBTBPD Bq-I I（略称）を発光層のホスト材料及び電子輸送層として用いることにより、信頼性の高い、寿命が長い素子を実現できることが示された。

30

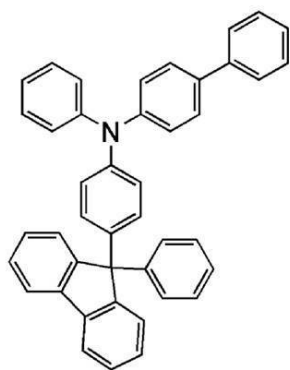
【実施例9】

【0348】

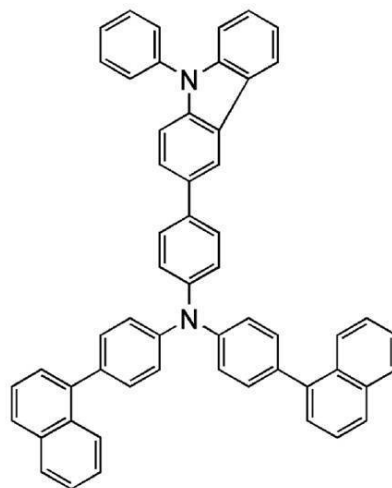
本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図27を用いて説明する。本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

【0349】

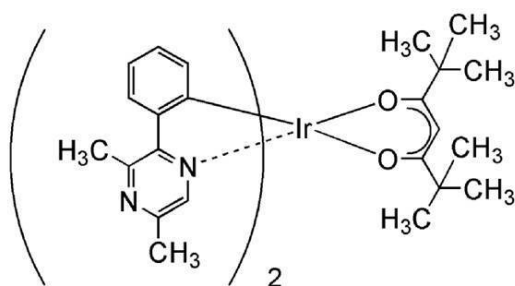
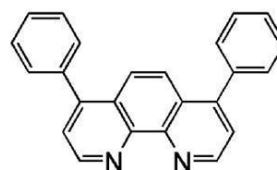
【化 7 4】



BPAFLP



PCBNBB

 $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ 

BPhen

【0350】

以下に、本実施例の発光素子4及び発光素子5の作製方法を示す。

【0351】

(発光素子4)

まず、基板1100上に、珪素または酸化珪素を含有した酸化インジウム－酸化スズ化合物 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第1の電極1101を形成した。なお、用いたターゲットの組成は、 $In_2O_3 : SnO_2 : SiO_2 = 85 : 10 : 5$ [重量%] とした。また、第1の電極1101の膜厚は、110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。ここで、第1の電極1101は、発光素子の陽極として機能する電極である。

【0352】

次に、基板1100上に発光素子を形成するための前処理として、基板表面を水で洗浄し、200℃で1時間焼成した後、UVオゾン処理を370秒行った。

【0353】

その後、 10^{-4} Pa程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において、170℃で30分間の真空焼成を行った後、基板1100を30分程度放冷した。

【0354】

次に、第1の電極1101が形成された面が下方となるように、第1の電極1101が形成された基板1100を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、 10^{-4} Pa程度まで減圧した後、第1の電極1101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン (略称: BPAFLP) と酸化モリブデンを共蒸着することで、正孔注入層1111を形成した。

その膜厚は、40 nmとし、BPAFLP（略称）と酸化モリブデンの比率は、重量比で4：2（＝BPAFLP：酸化モリブデン）となるように調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で、複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法である。

【0355】

次に、正孔注入層1111上に、BPAFLP（略称）を20 nmの膜厚となるように成膜し、正孔輸送層1112を形成した。

【0356】

次に、実施例3で合成した6－[3－（ジベンゾチオフェン－4－イル）フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン（略称：6mDBTPDBq-II）、4,4'-ジ（1-ナフチル）-4''-（9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル）トリフェニルアミン（略称：PCBNBB）及びビス（3,5-ジメチル-2-フェニルピラジナト）（ジピバロイルメタナト）イリジウム（III）（略称：[Ir(mppr-Me)₂(dpm)]）を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。ここで、6mDBTPDBq-II（略称）、PCBNBB（略称）及び[Ir(mppr-Me)₂(dpm)]（略称）の重量比は、0.8：0.2：0.05（＝6mDBTPDBq-II：PCBNBB：[Ir(mppr-Me)₂(dpm)]）となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40 nmとした。

【0357】

さらに、発光層1113上に6mDBTPDBq-II（略称）を膜厚10 nmとなるように成膜し、第1の電子輸送層1114aを形成した。

【0358】

その後、第1の電子輸送層1114a上にBPhen（略称）を膜厚20 nmとなるように成膜し、第2の電子輸送層1114bを形成した。

【0359】

さらに、第2の電子輸送層1114b上に、フッ化リチウム（LiF）を1 nmの膜厚で蒸着し、電子注入層1115を形成した。

【0360】

最後に、陰極として機能する第2の電極1103として、アルミニウムを200 nmの膜厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子4を作製した。

【0361】

なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【0362】

（発光素子5）

発光素子5の発光層1113は、6mDBTPDBq-II（略称）及び[Ir(mppr-Me)₂(dpm)]（略称）を共蒸着することで形成した。ここで、6mDBTPDBq-II（略称）及び[Ir(mppr-Me)₂(dpm)]（略称）の重量比は、1：0.05（＝6mDBTPDBq-II：[Ir(mppr-Me)₂(dpm)]）となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40 nmとした。発光層1113以外は発光素子4と同様に作製した。

【0363】

以上により得られた発光素子4及び発光素子5の素子構造を表5に示す。

【0364】

【表5】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子4	ITO 110nm	BPAFLP:MoO _x (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	6mDBTPDBq-II:PCBNBB:[Ir(mppr-Me) ₂ (dpm)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	6mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子5	ITO 110nm	BPAFLP:MoO _x (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	6mDBTPDBq-II:[Ir(mppr-Me) ₂ (dpm)] (=1:0.05) 40nm	6mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0365】

発光素子4及び発光素子5を、窒素雰囲気中のグローブボックス内において、各発光素子が大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に80℃にて1時間熱処理）を行った後、これら発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温（25℃に保たれた雰囲気）で行った。

【0366】

発光素子4及び発光素子5の輝度－電流効率特性を図37に示す。図37において、横軸は輝度（ cd/m^2 ）を、縦軸は電流効率（ cd/A ）を表す。また、電圧－輝度特性を図38に示す。図38において、横軸は電圧（V）を、縦軸は輝度（ cd/m^2 ）を表す。また、電圧－電流特性を図39に示す。図39において、横軸は電圧（V）を、縦軸は電流（mA）を表している。また、輝度－色度座標特性を図40に示す。図40において、横軸は輝度（ cd/m^2 ）を、縦軸は色度座標（x座標、又はy座標）を示す。また、輝度－パワー効率特性を図41に示す。図41において、横軸は、輝度（ cd/m^2 ）を、縦軸は、パワー効率（ lm/W ）を表す。また、輝度－外部量子効率特性を図42に示す。図42において、横軸は輝度（ cd/m^2 ）を、縦軸は外部量子効率（%）を示す。また、各発光素子における輝度1000 cd/m^2 付近のときの電圧（V）、電流密度（ mA/cm^2 ）、CIE色度座標（x、y）、輝度（ cd/m^2 ）、電流効率（ cd/A ）、パワー効率（ lm/W ）、外部量子効率（%）を表6に示す。

【0367】

【表6】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm^2)	色度x	色度y	輝度 (cd/m^2)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)	外部 量子効率(%)
発光素子4	3.0	1.3	0.55	0.45	870	66	69	24
発光素子5	3.2	2.3	0.54	0.45	1100	50	49	18

【0368】

また、発光素子4及び発光素子5に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図43に示す。図43において、横軸は波長（nm）、縦軸は発光強度（任意単位）を表す。図43に示す通り、発光素子4の発光スペクトルは、576nmにピークを有し、発光素子5の発光スペクトルは、578nmにピークを有していた。なお、図43に示す発光素子4と発光素子5の発光スペクトルは、略重なって示されている。また、表6に示す通り、870 cd/m^2 の輝度の時の発光素子4のCIE色度座標は（x，y）＝（0.55，0.45）であった。また、1100 cd/m^2 の輝度の時の発光素子5のCIE色度座標は（x，y）＝（0.54，0.45）であった。発光素子4及び発光素子5は、それぞれ $[\text{Ir}(\text{mppy}-\text{Me})_2(\text{dpm})]$ に由来する発光が得られたことがわかった。

【0369】

以上のことから、6mDBTPDBq-III（略称）はT1準位が高く、少なくともオレンジ色から、それより長波長側の燐光性化合物を発光物質に用いる場合のホスト材料として好適に用いることができることがわかった。

【0370】

図40に示す通り、発光素子4及び発光素子5は、低輝度から高輝度まで、色変化がほとんど見られなかった。このことから、発光素子4及び発光素子5は、キャリアバランスの良好な素子であると言える。

【0371】

図37乃至図39、図41、及び図42に示す通り、発光素子4及び発光素子5は、駆動電圧が低いことがわかった。また、発光素子4及び発光素子5は、電流効率が高く、外部量子効率が高く、パワー効率が高いことがわかった。特に、発光素子4は、発光素子5よりも電流効率、外部量子効率、及びパワー効率が高い結果を示した。これは、発光素子

4の発光層にアミン系等の正孔輸送性の高い材料を含んでいるためと考えられる。

【0372】

以上示したように、6mDBTPDBq-III（略称）を発光層のホスト材料として用いることにより、駆動電圧が低い発光素子を作製することができた。また、電流効率が低い発光素子を作製することができた。また上記ホスト材料にさらに正孔輸送性の高い材料をドーピングすることで、より発光効率の高い素子を得られることがわかった。

【0373】

次に、発光素子4の信頼性試験を行った。信頼性試験は、初期輝度を5000cd/m²に設定し、電流密度一定の条件で発光素子4を駆動した。

【0374】

82時間後の輝度について、発光素子4は、初期輝度の80%を保っていた。

【0375】

以上の結果から、6mDBTPDBq-III（略称）を発光層のホスト材料として用いることにより、信頼性の高い素子を実現できることが示された。

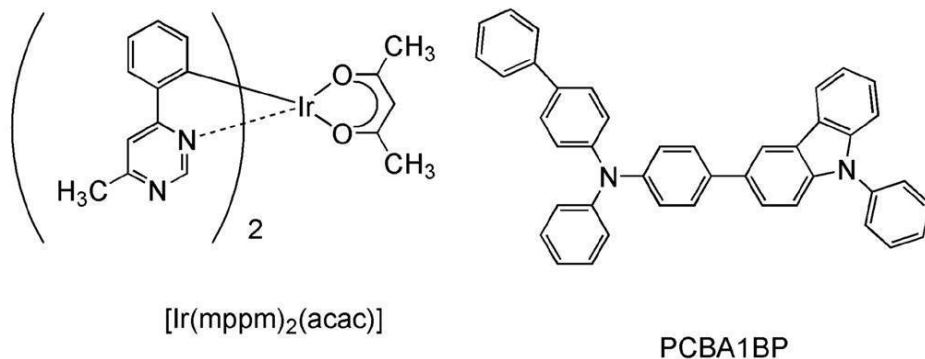
【実施例10】

【0376】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図27を用いて説明する。本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。なお、既に示した材料については省略する。

【0377】

【化75】



【0378】

以下に、本実施例の発光素子6の作製方法を示す。

【0379】

（発光素子6）

発光素子6は、発光層1113以外は発光素子4と同様に作製した。以下に、発光素子6の発光層1113について記す。

【0380】

発光素子6の発光層1113は、実施例3で合成した6mDBTPDBq-III、4-フェニル-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBA1BP）、及び（アセチルアセトナト）ビス（6-メチル-4-フェニルピリミジナト）イリジウム（III）（略称：[Ir(mppm)₂(acac)]）を共蒸着することで形成した。ここで、6mDBTPDBq-III（略称）、PCBA1BP（略称）及び[Ir(mppm)₂(acac)]（略称）の重量比は、0.8:0.2:0.05（=6mDBTPDBq-III:PCBA1BP:[Ir(mppm)₂(acac)]）となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。

【0381】

得られた発光素子6の素子構造を表7に示す。

【0382】

10

20

30

40

【表 7】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子6	ITO 110nm	BPAFLP:MoO _x (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	6mDBTPDBq-II:PCBA1BP: [Ir(mppm) ₂ (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	6mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0383】

発光素子6を、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光素子が大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に80℃にて1時間熱処理）を行った後、発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温（25℃に保たれた雰囲気）で行った。

10

【0384】

発光素子6の輝度－電流効率特性を図44に示す。図44において、横軸は輝度（cd/m²）を、縦軸は電流効率（cd/A）を表す。また、輝度－色度座標特性を図45に示す。図45において、横軸は輝度（cd/m²）を、縦軸は色度座標（x座標、又はy座標）を示す。また、輝度－外部量子効率特性を図46に示す。図46において、横軸は輝度（cd/m²）を、縦軸は外部量子効率（%）を示す。また、発光素子6における輝度910cd/m²のときの電圧（V）、電流密度（mA/cm²）、CIE色度座標（x、y）、電流効率（cd/A）を表8に示す。

【0385】

20

【表 8】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm ²)	色度x	色度y	輝度 (cd/m ²)	電流効率 (cd/A)
発光素子6	3.2	1.4	0.42	0.57	910	67

【0386】

また、発光素子6に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図47に示す。図47において、横軸は波長（nm）、縦軸は発光強度（任意単位）を表す。図47に示す通り、発光素子6の発光スペクトルは、545nmにピークを有していた。また、表8に示す通り、910cd/m²の輝度の時の発光素子6のCIE色度座標は（x，y）＝（0.42，0.57）であった。発光素子6は、[Ir(mppm)₂(acac)]（略称）に由来する発光が得られたことがわかった。

30

【0387】

以上のことから、6mDBTPDBq-II（略称）はT1準位が高く、少なくとも黄色から、それより長波長側の燐光性化合物を発光物質に用いる場合のホスト材料として好適に用いることができることがわかった。

【0388】

図45に示す通り、発光素子6は、低輝度から高輝度まで、色変化がほとんど見られなかった。このことから、発光素子6は、キャリアバランスの良好な素子であると言える。

40

【0389】

表8、図44及び図46に示す通り、発光素子6は、電流効率が高く、外部量子効率が高いことがわかった。また、発光素子6は、駆動電圧が低いことがわかった。

【0390】

以上示したように、6mDBTPDBq-II（略称）を発光層のホスト材料として用いることにより、駆動電圧が低い発光素子を作製することができた。また、電流効率が高い発光素子を作製することができた。

【符号の説明】

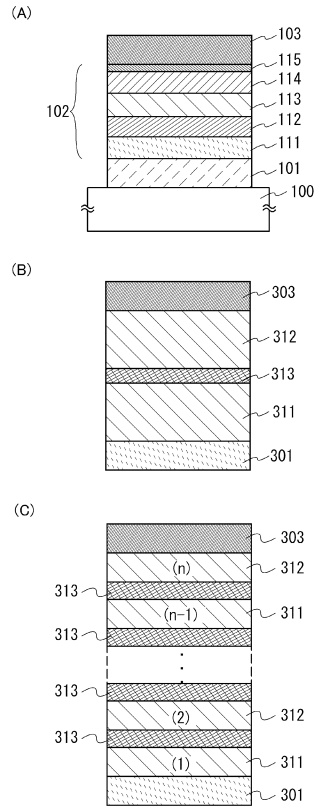
【0391】

50

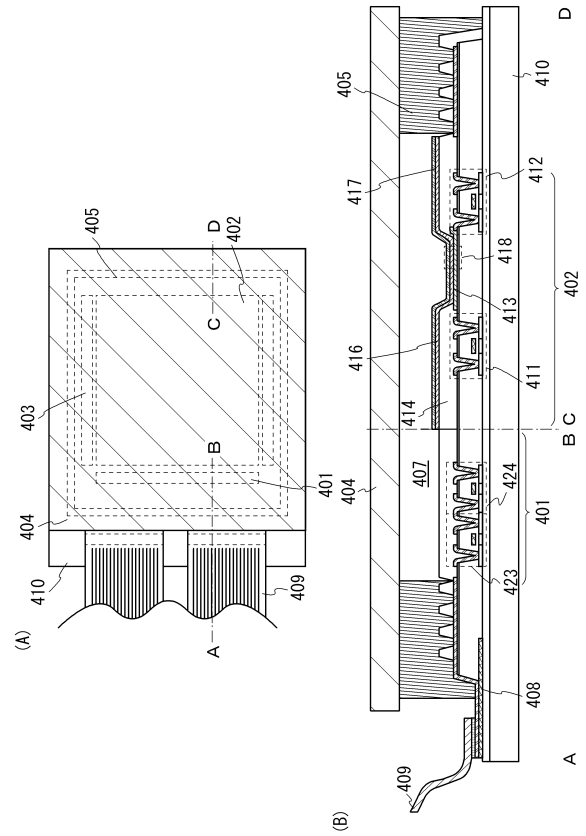
1 0 0	基板	
1 0 1	第 1 の電極	
1 0 2	E L 層	
1 0 3	第 2 の電極	
1 1 1	正孔注入層	
1 1 2	正孔輸送層	
1 1 3	発光層	
1 1 4	電子輸送層	
1 1 5	電子注入層	
3 0 1	第 1 の電極	10
3 0 3	第 2 の電極	
3 1 1	第 1 の発光層	
3 1 2	第 2 の発光層	
3 1 3	電荷発生層	
4 0 1	ソース側駆動回路	
4 0 2	画素部	
4 0 3	ゲート側駆動回路	
4 0 4	封止基板	
4 0 5	シール材	
4 0 7	空間	20
4 0 8	配線	
4 0 9	F P C	
4 1 0	素子基板	
4 1 1	スイッチング用 T F T	
4 1 2	電流制御用 T F T	
4 1 3	第 1 の電極	
4 1 4	絶縁物	
4 1 6	E L 層	
4 1 7	第 2 の電極	
4 1 8	発光素子	30
4 2 3	n チャネル型 T F T	
4 2 4	p チャネル型 T F T	
5 0 1	基板	
5 0 2	第 1 の電極	
5 0 3	第 2 の電極	
5 0 4	E L 層	
5 0 5	絶縁層	
5 0 6	隔壁層	
6 0 1	照明装置	
6 0 2	照明装置	40
6 0 3	卓上照明器具	
1 1 0 0	基板	
1 1 0 1	第 1 の電極	
1 1 0 3	第 2 の電極	
1 1 1 1	正孔注入層	
1 1 1 2	正孔輸送層	
1 1 1 3	発光層	
1 1 1 4 a	第 1 の電子輸送層	
1 1 1 4 b	第 2 の電子輸送層	
1 1 1 5	電子注入層	50

7 1 0 0	テレビジョン装置	
7 1 0 1	筐体	
7 1 0 3	表示部	
7 1 0 5	スタンド	
7 1 0 7	表示部	
7 1 0 9	操作キー	
7 1 1 0	リモコン操作機	
7 2 0 1	本体	
7 2 0 2	筐体	
7 2 0 3	表示部	10
7 2 0 4	キーボード	
7 2 0 5	外部接続ポート	
7 2 0 6	ポインティングデバイス	
7 3 0 1	筐体	
7 3 0 2	筐体	
7 3 0 3	連結部	
7 3 0 4	表示部	
7 3 0 5	表示部	
7 3 0 6	スピーカ部	
7 3 0 7	記録媒体挿入部	20
7 3 0 8	L E D ランプ	
7 3 0 9	操作キー	
7 3 1 0	接続端子	
7 3 1 1	センサ	
7 3 1 2	マイクロフォン	
7 4 0 0	携帯電話機	
7 4 0 1	筐体	
7 4 0 2	表示部	
7 4 0 3	操作ボタン	
7 4 0 4	外部接続ポート	30
7 4 0 5	スピーカ	
7 4 0 6	マイク	
7 5 0 1	照明部	
7 5 0 2	傘	
7 5 0 3	可変アーム	
7 5 0 4	支柱	
7 5 0 5	台	
7 5 0 6	電源	
9 5 0 1	照明部	
9 5 0 3	支柱	40
9 5 0 5	支持台	

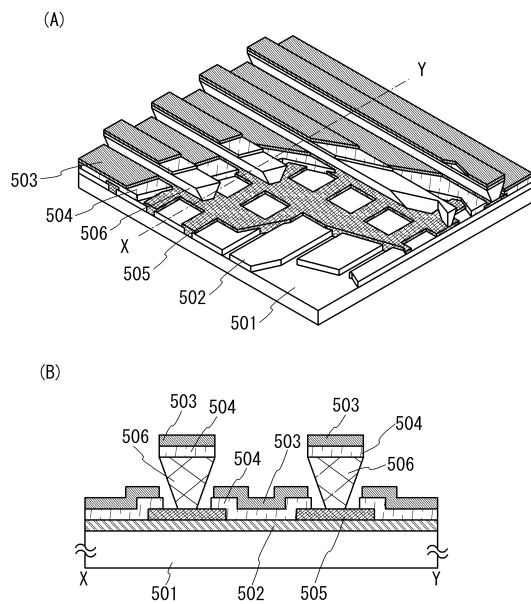
【図 1】



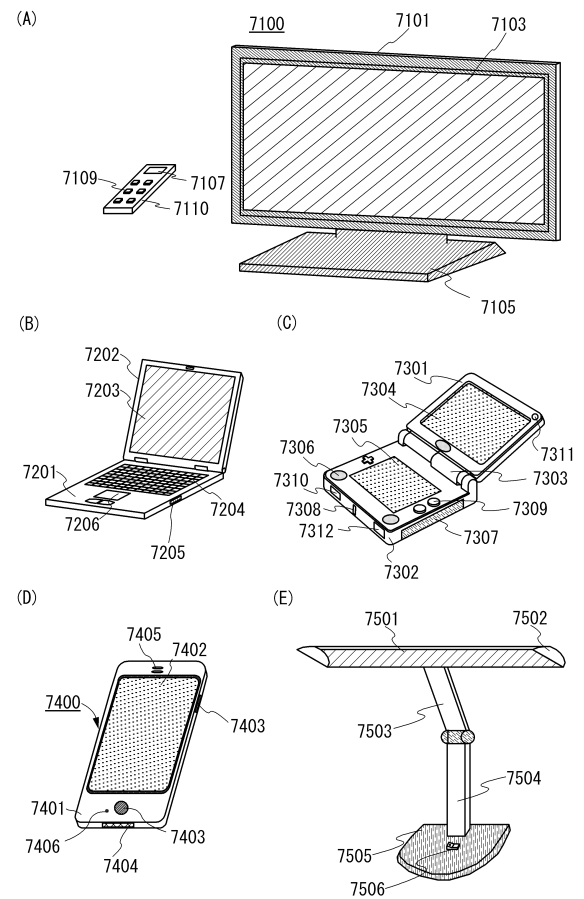
【図 2】



【図 3】

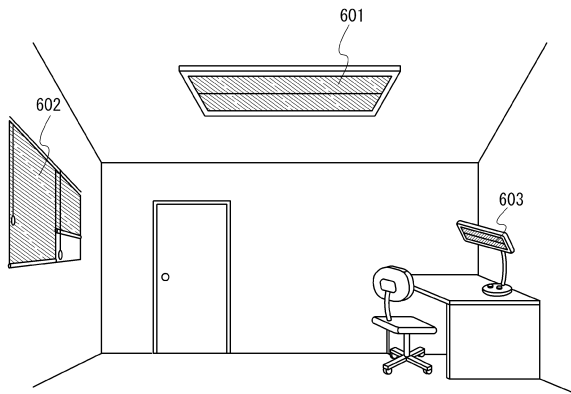


【図 4】

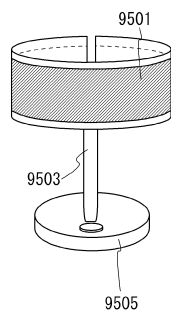


【図 5】

(A)

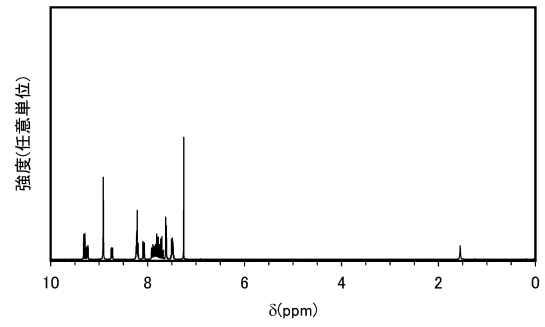


(B)

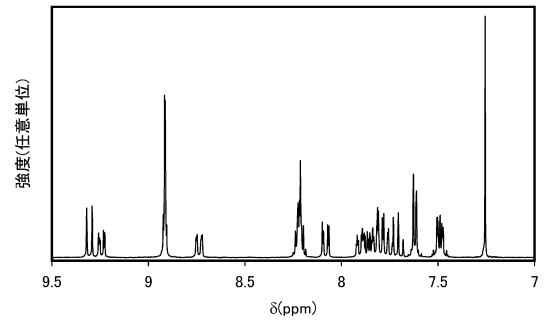


【図 6】

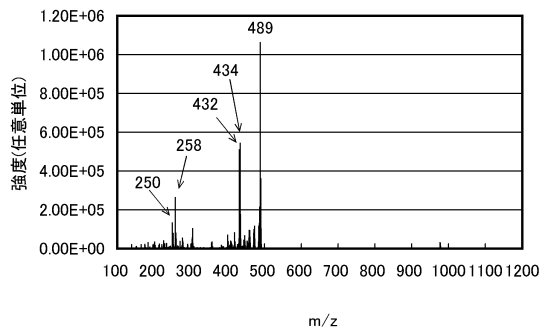
(A)



(B)

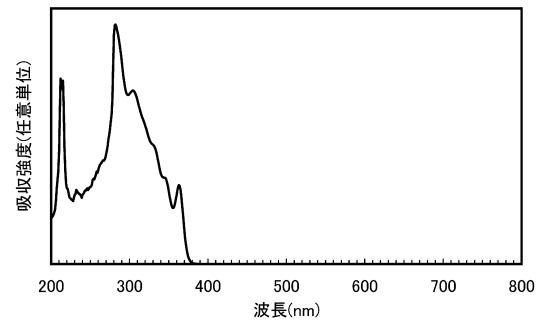


【図 7】

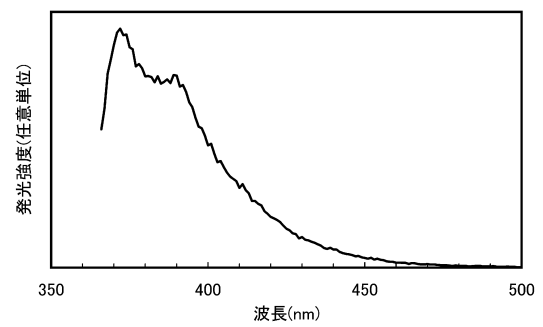


【図 8】

(A)

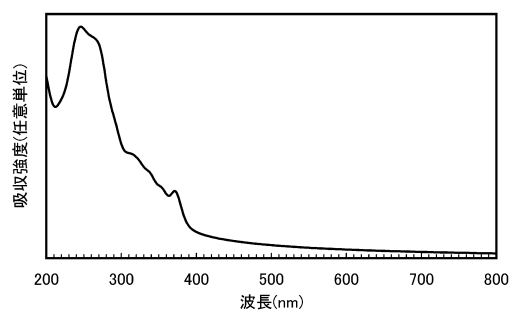


(B)

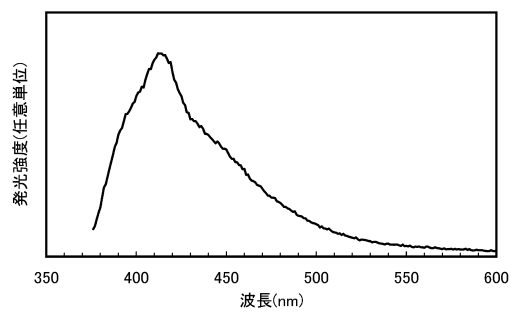


【図 9】

(A)

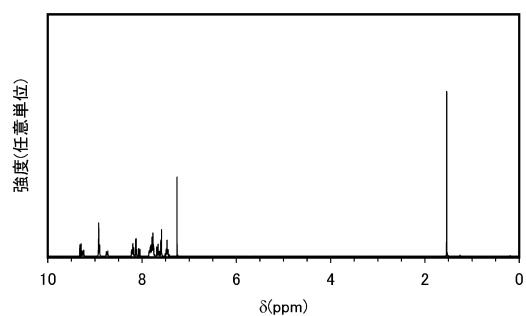


(B)

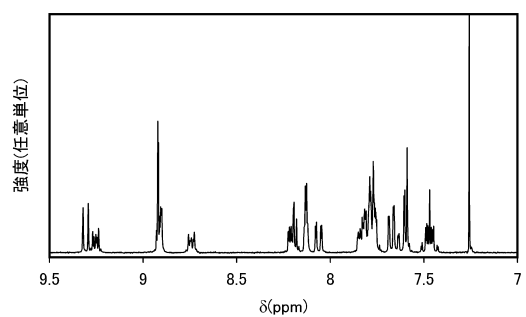


【図 10】

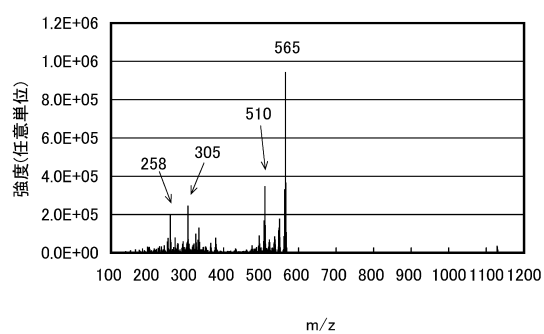
(A)



(B)

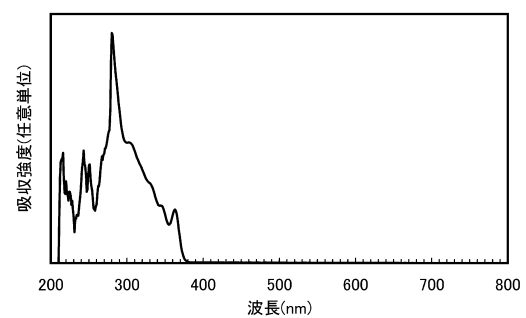


【図 11】

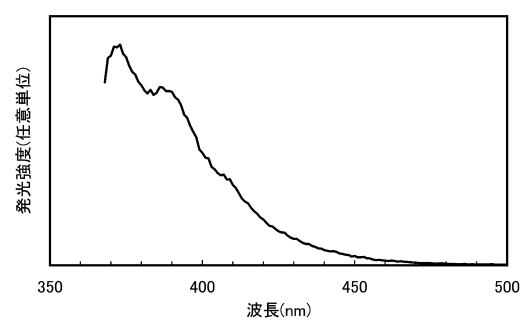


【図 12】

(A)

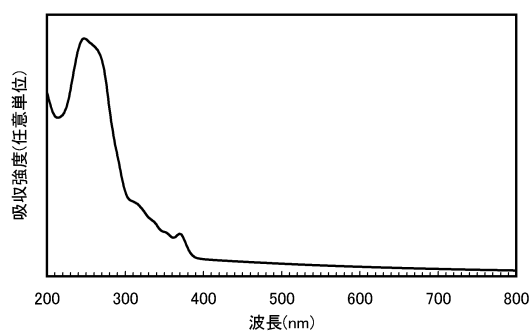


(B)

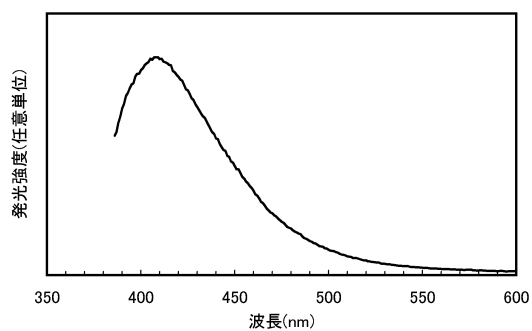


【図 1 3】

(A)

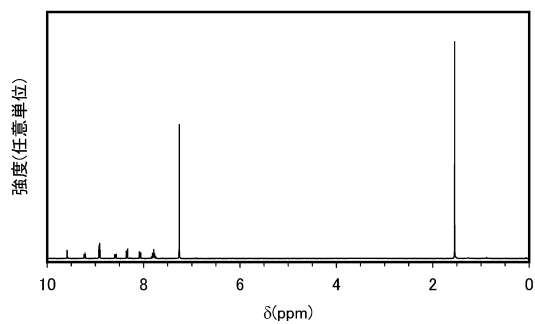


(B)

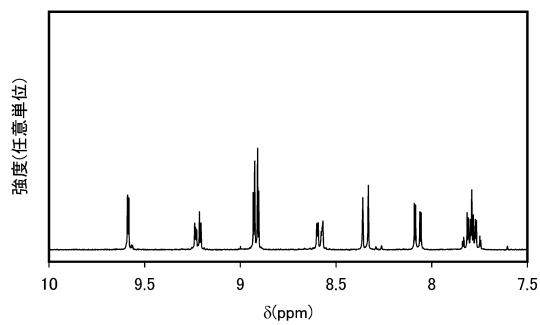


【図 1 4】

(A)

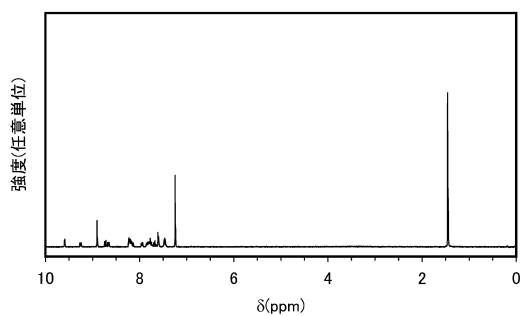


(B)

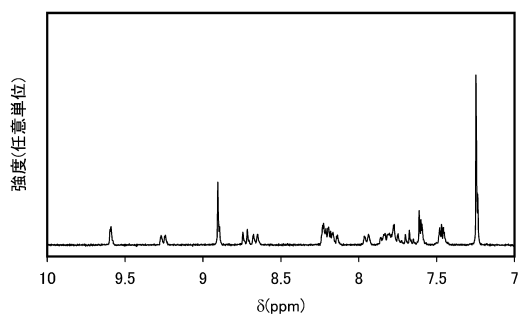


【図 1 5】

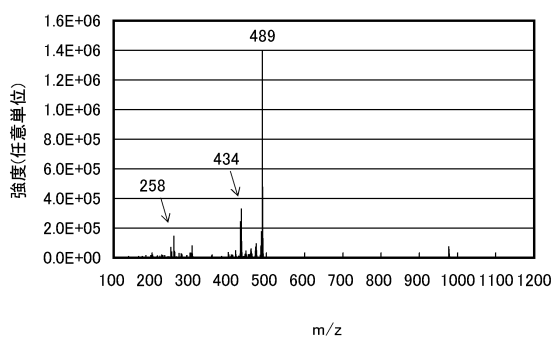
(A)



(B)

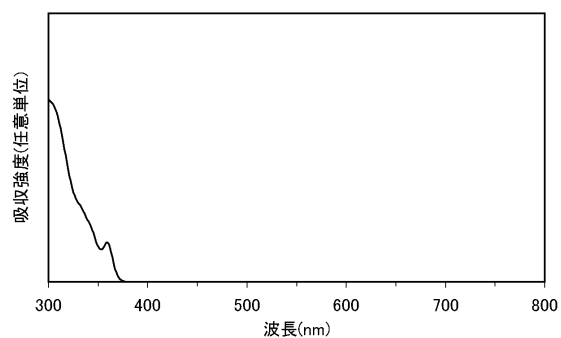


【図 1 6】

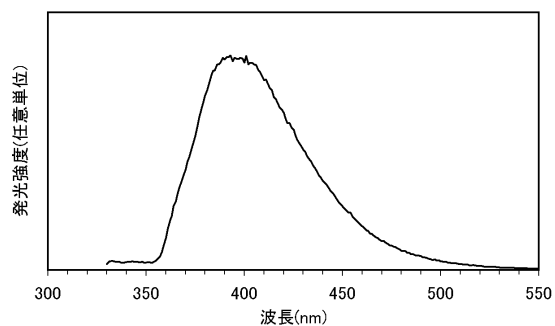


【図 17】

(A)

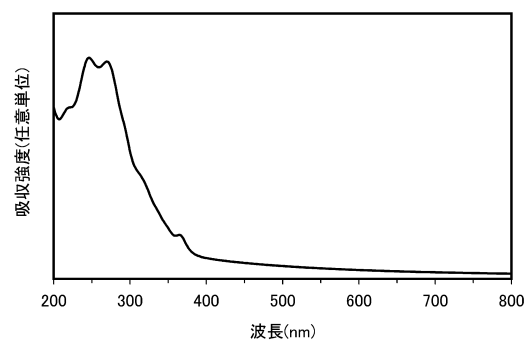


(B)

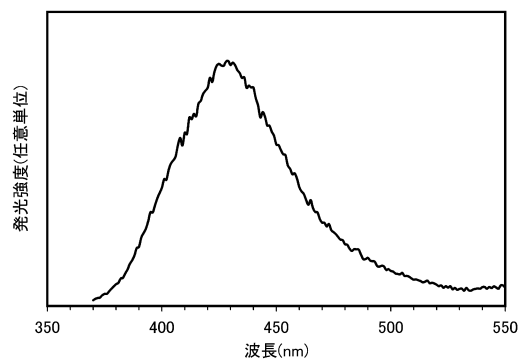


【図 18】

(A)

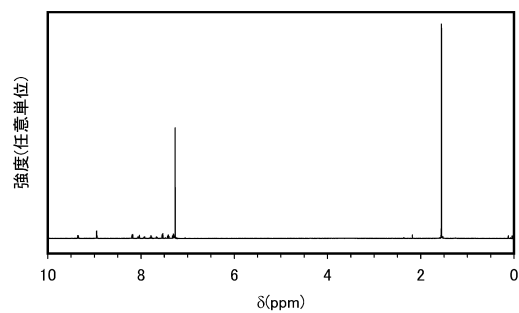


(B)

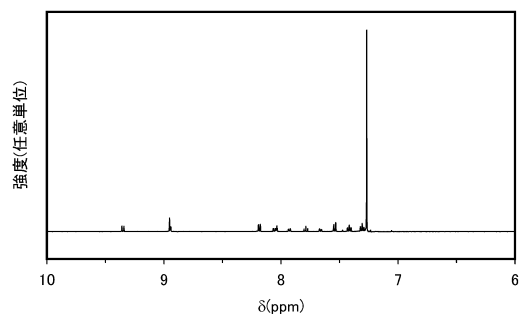


【図 19】

(A)

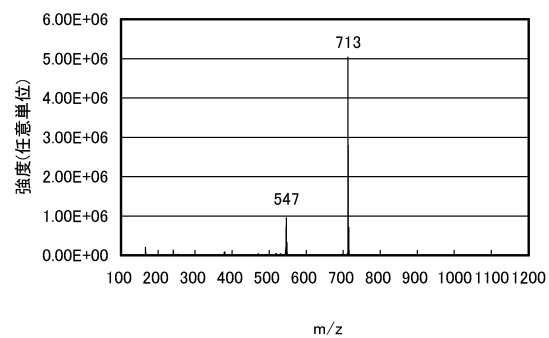


(B)

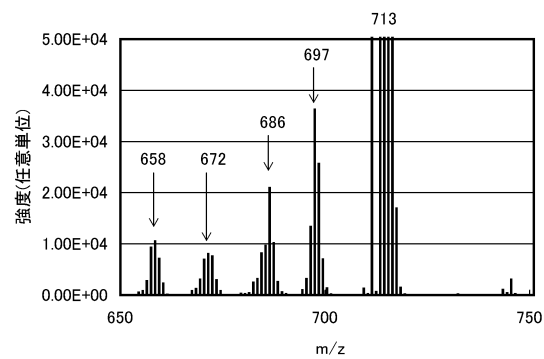


【図 20】

(A)

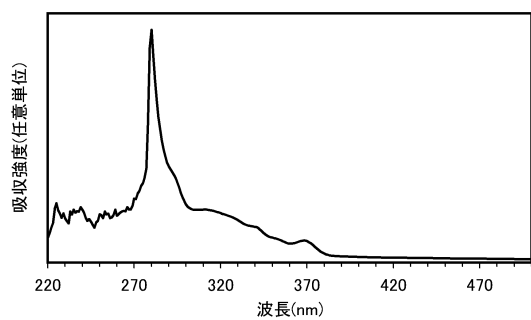


(B)

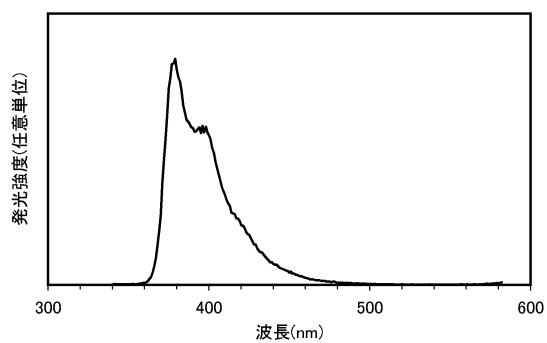


【図 2 1】

(A)

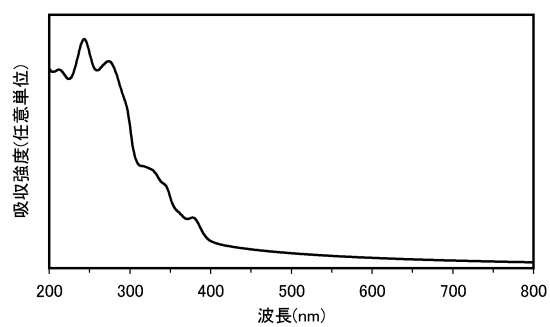


(B)

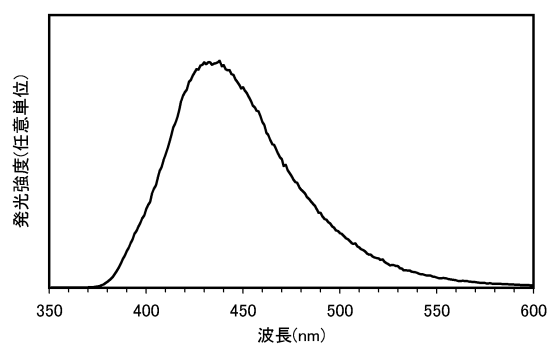


【図 2 2】

(A)

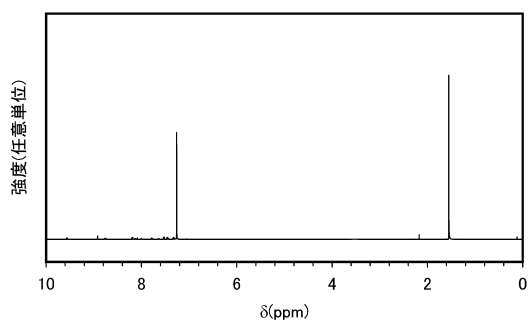


(B)

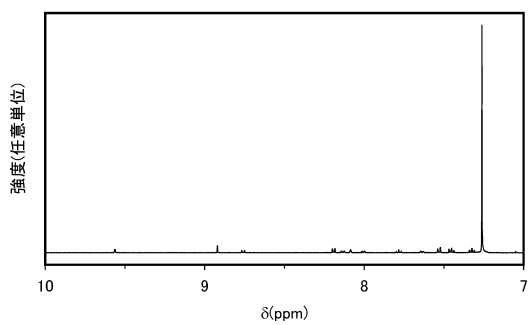


【図 2 3】

(A)

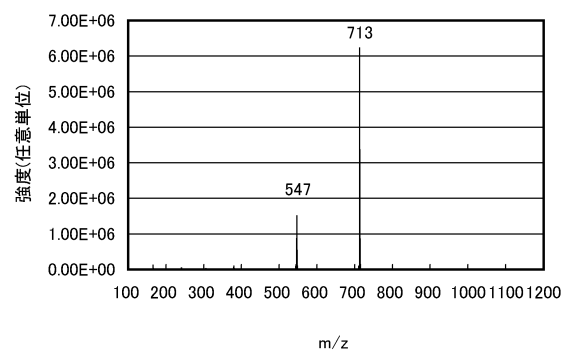


(B)

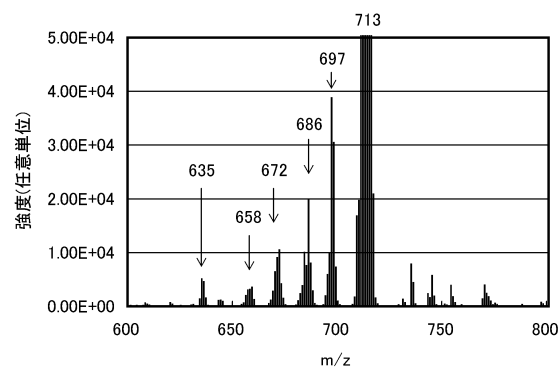


【図 2 4】

(A)

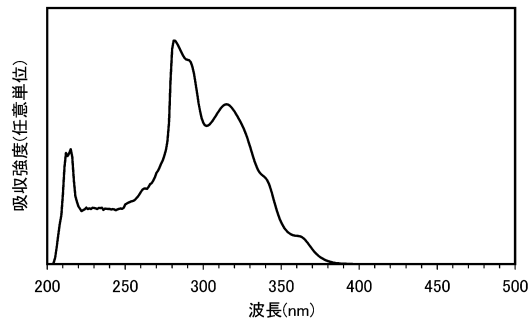


(B)

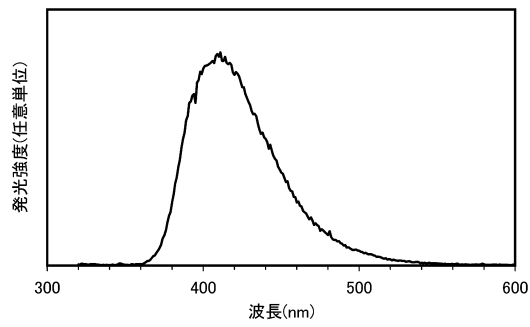


【図 2 5】

(A)

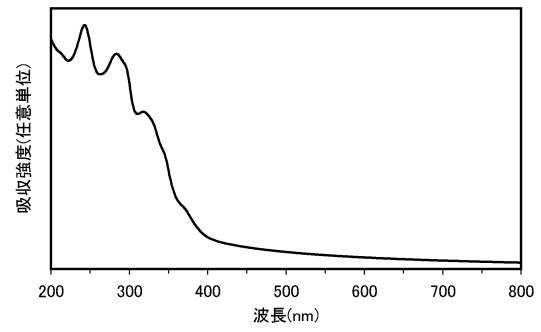


(B)

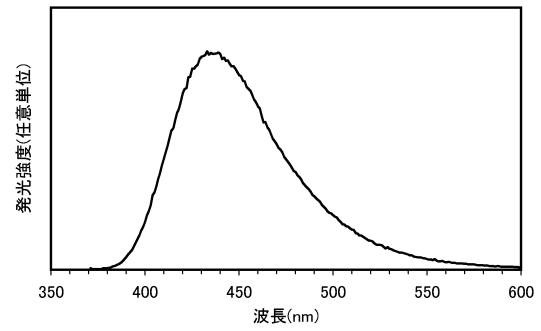


【図 2 6】

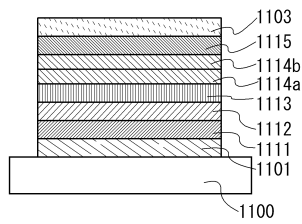
(A)



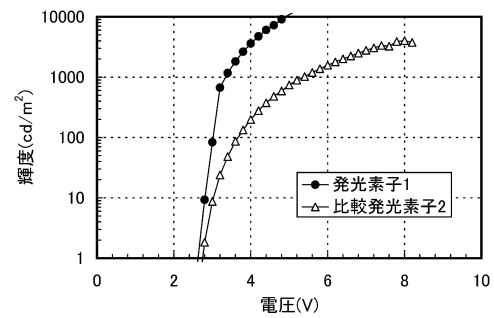
(B)



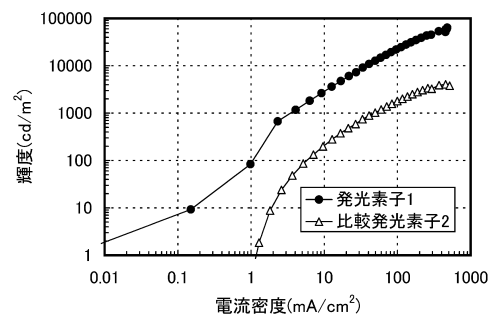
【図 2 7】



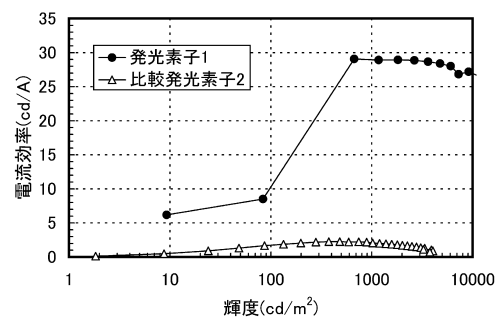
【図 2 9】



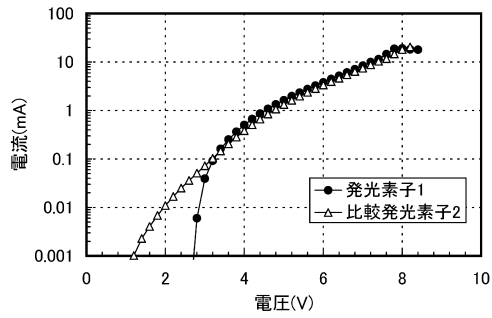
【図 2 8】



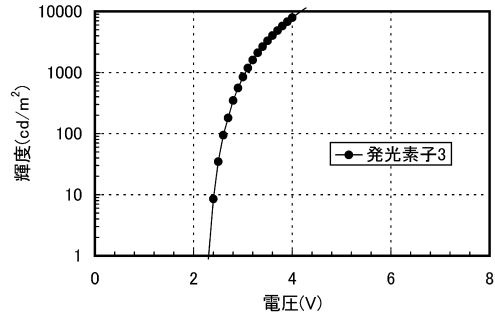
【図 3 0】



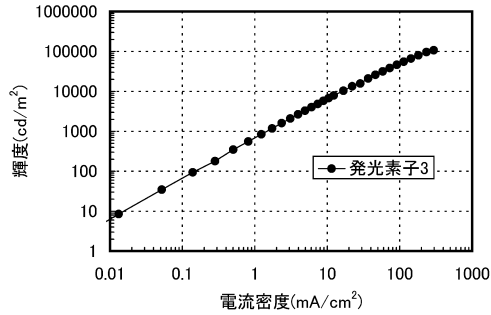
【図 3 1】



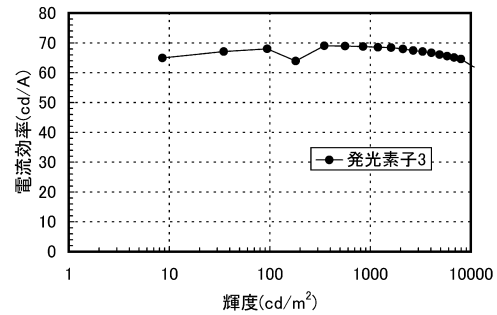
【図 3 3】



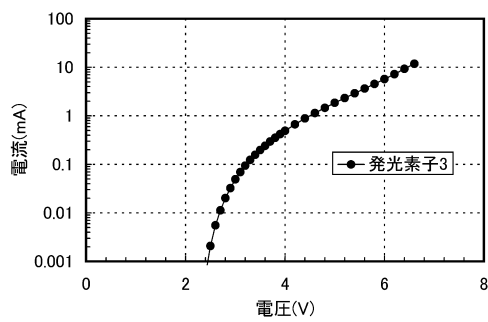
【図 3 2】



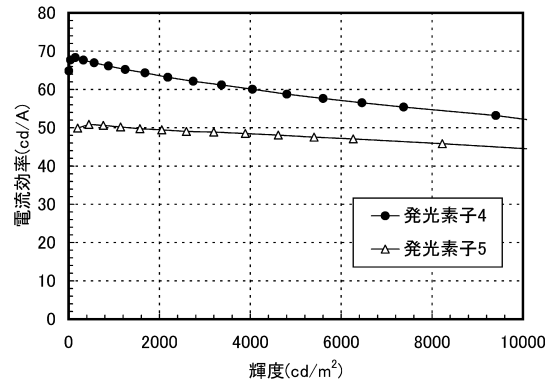
【図 3 4】



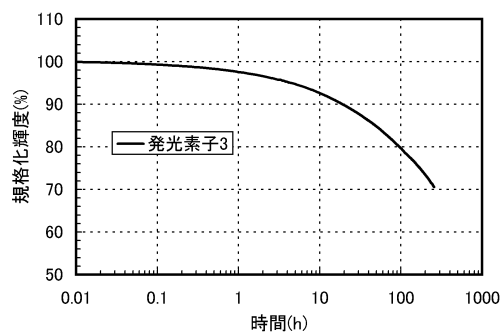
【図 3 5】



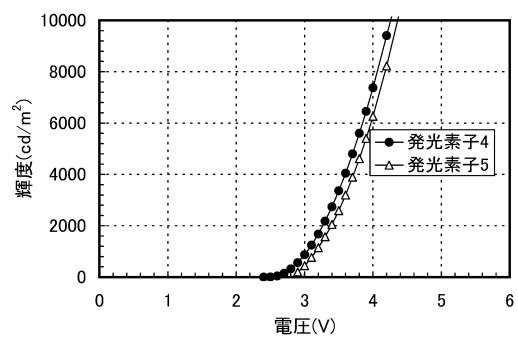
【図 3 7】



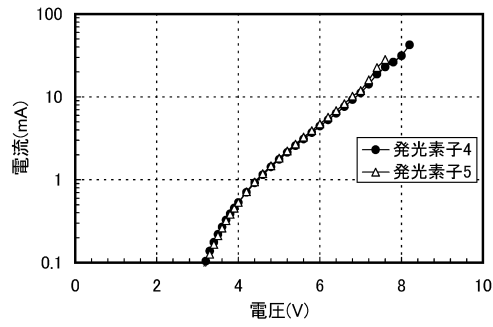
【図 3 6】



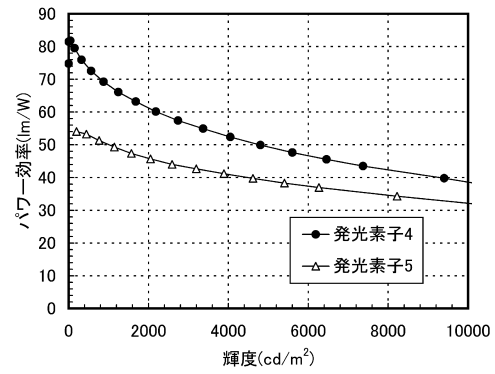
【図 3 8】



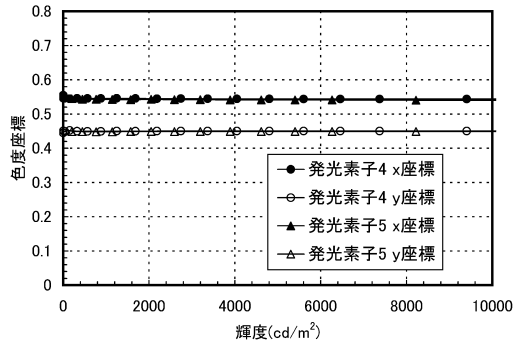
【図 3 9】



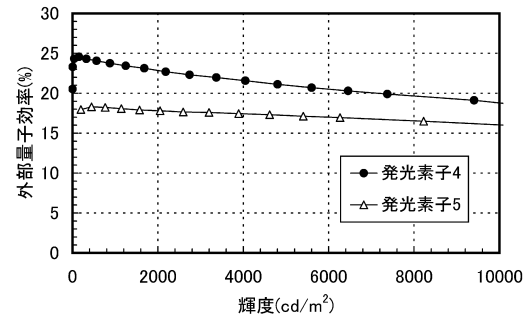
【図 4 1】



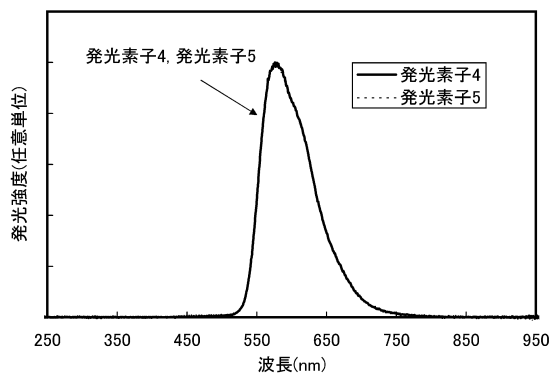
【図 4 0】



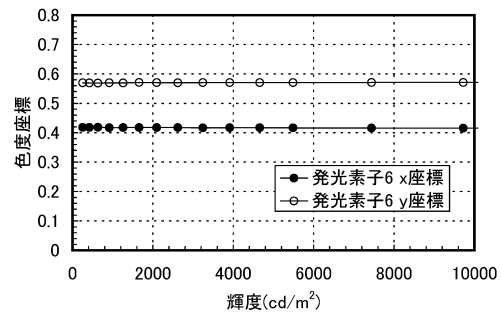
【図 4 2】



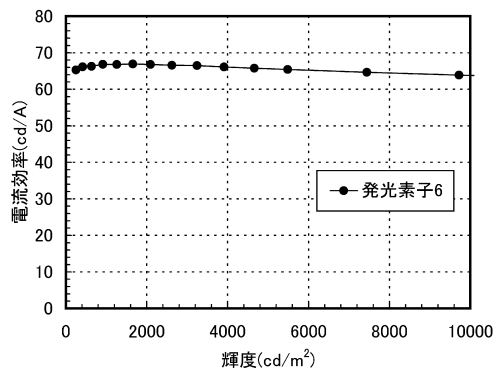
【図 4 3】



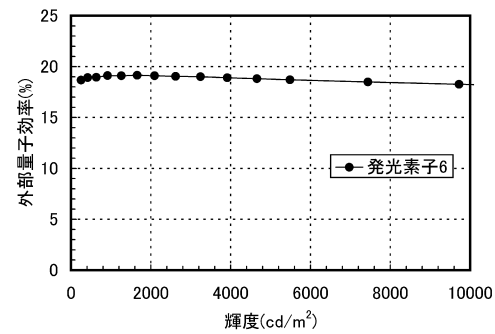
【図 4 5】



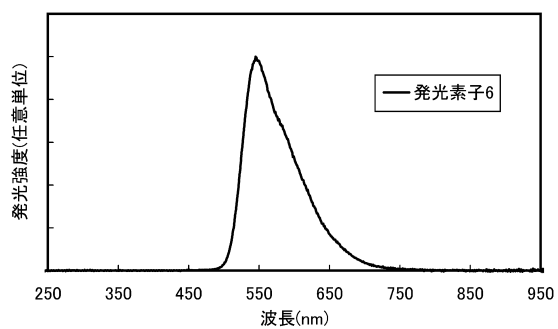
【図 4 4】



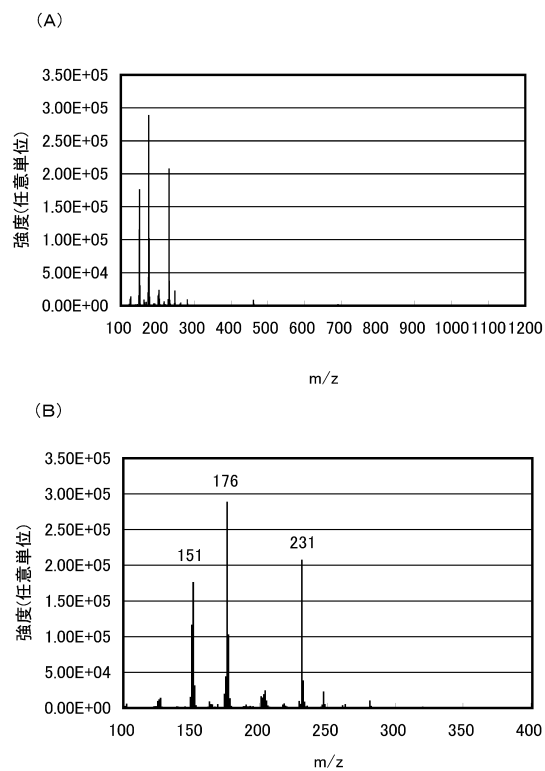
【図 4 6】



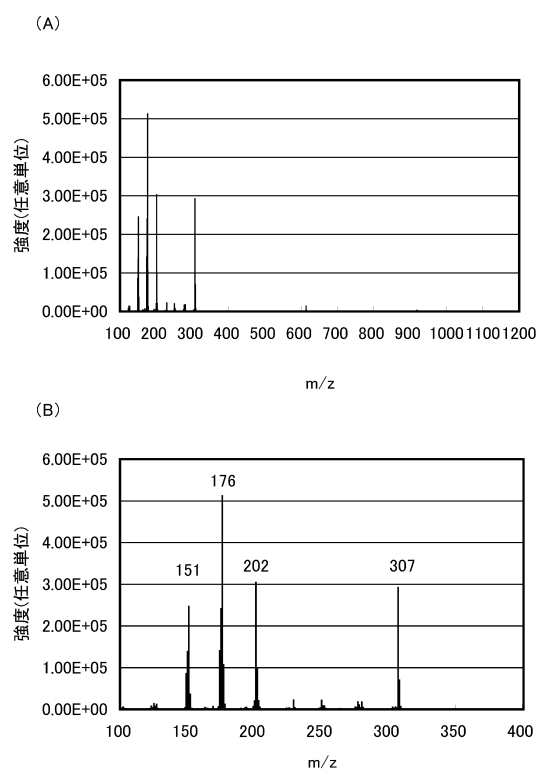
【図 4 7】



【図 4 8】



【図 4 9】



フロントページの続き

(72)発明者 大澤 信晴

栃木県栃木市都賀町升塚161-2 アドバンスト フィルム デバイス インク株式会社内

(72)発明者 瀬尾 哲史

神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

審査官 中村 博之

(56)参考文献 特開2011-201869 (JP, A)

特開2013-060413 (JP, A)

特開2013-060414 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01L 51/50

CAplus/REGISTRY (STN)