

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6312960号
(P6312960)

(45) 発行日 平成30年4月18日(2018.4.18)

(24) 登録日 平成30年3月30日(2018.3.30)

(51) Int.Cl.

F 1

H01L 51/50 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)
C07D 409/10 (2006.01)H05B 33/14 B
C09K 11/06 690
C07D 409/10 C S P

請求項の数 10 (全 57 頁)

(21) 出願番号 特願2013-155505 (P2013-155505)
 (22) 出願日 平成25年7月26日 (2013.7.26)
 (65) 公開番号 特開2014-45176 (P2014-45176A)
 (43) 公開日 平成26年3月13日 (2014.3.13)
 審査請求日 平成28年7月14日 (2016.7.14)
 (31) 優先権主張番号 特願2012-172801 (P2012-172801)
 (32) 優先日 平成24年8月3日 (2012.8.3)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 000153878
 株式会社半導体エネルギー研究所
 神奈川県厚木市長谷398番地
 (72) 発明者 井上 英子
 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
 (72) 発明者 森久保 郡
 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
 (72) 発明者 橋本 直明
 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
 (72) 発明者 濑尾 広美
 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

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】発光素子、発光装置、電子機器、照明装置及び複素環化合物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一対の電極間に、

1つのビリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含む第1の有機化合物と

、
芳香族アミンである第2の有機化合物と、

三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質と、

を含む層を有し、

前記第1の有機化合物と前記第2の有機化合物とは励起錯体を形成する組み合わせであることを特徴とする発光素子。

10

【請求項 2】

一対の電極間に、

1つのビリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含み、かつ分子量が400以上1200以下である第1の有機化合物と、

芳香族アミンである第2の有機化合物と、

三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質と、

を含む層を有し、

前記第1の有機化合物と前記第2の有機化合物とは励起錯体を形成する組み合わせであることを特徴とする発光素子。

【請求項 3】

20

一対の電極間に、

1つのピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含む第1の有機化合物と

芳香族アミンである第2の有機化合物と、

三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質と、

を含む層を有し、

前記一対の電極間に電圧を印加した際に、前記第1の有機化合物と前記第2の有機化合物とは励起錯体を形成することを特徴とする発光素子。

【請求項4】

一対の電極間に、

10

1つのピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含み、かつ分子量が400以上1200以下である第1の有機化合物と、

芳香族アミンである第2の有機化合物と、

三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質と、

を含む層を有し、

前記一対の電極間に電圧を印加した際に、前記第1の有機化合物と前記第2の有機化合物とは励起錯体を形成することを特徴とする発光素子。

【請求項5】

請求項1乃至4のいずれか一において、

20

前記正孔輸送性骨格を有する環は、カルバゾール環、ジベンゾチオフェン環、またはジベンゾフラン環であることを特徴とする発光素子。

【請求項6】

請求項1乃至請求項5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7】

請求項6に記載の発光装置を用いた電子機器。

【請求項8】

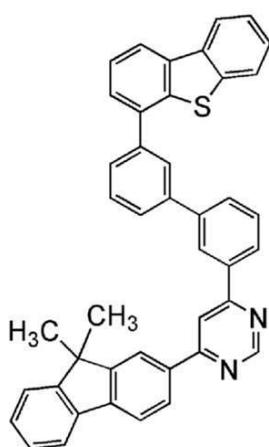
請求項7に記載の発光装置を用いた照明装置。

【請求項9】

構造式(121)で表される複素環化合物。

【化1】

30



6FL-4mDBTBPPm

(121)

40

【請求項10】

請求項9に記載の複素環化合物を用いた発光素子。

【発明の詳細な説明】

50

【技術分野】**【0001】**

本発明は、発光素子、発光装置、電子機器、照明装置及び複素環化合物に関する。

【背景技術】**【0002】**

近年、エレクトロルミネッセンス (EL: Electro Luminescence) 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、一対の電極間に発光物質を含む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】

10

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】

そして、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、面状の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が容易に形成できる。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】

20

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、一対の電極間に当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、 $S^* : T^* = 1 : 3$ であると考えられている。

30

【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】

40

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 75 ~ 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 3 ~ 4 倍の発光効率が可能となる。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。

50

【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（基底状態と三重項励起状態とのエネルギー差）を有することである。

【0011】

また、一重項励起エネルギー（基底状態と一重項励起状態とのエネルギー差）は三重項励起エネルギーよりも大きいため、大きな三重項励起エネルギーを有する物質は大きな一重項励起エネルギーをも有する。したがって、上述したような大きな三重項励起エネルギーを有する物質は、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。

10

【0012】

燐光性化合物をゲスト材料とする場合のホスト材料、または電子輸送材料として、ピリミジン等を有する化合物の研究がされている（例えば、特許文献1）。

【0013】

また、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、カルバゾール骨格と含窒素ヘテロ芳香族環を組み合わせた化合物が開示されている（例えば、特許文献2）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0014】

20

【特許文献1】特開2003-45662号公報

【特許文献2】国際公開第2011-046182号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0015】

特許文献1または特許文献2において報告されているように、燐光性化合物のホスト材料の開発、または燐光性化合物のゲスト材料の開発は活発に行われている。しかし、発光素子としてみた場合、発光効率、信頼性、発光特性、合成効率、またはコストといった面で改善の余地が残されており、より優れた発光素子の開発が望まれている。

30

【0016】

上記問題に鑑み、本発明の一態様は、耐熱性に優れ、駆動電圧が低く、長寿命な発光素子を提供する。また、本発明の一態様は、耐熱性に優れ、発光効率の高い発光素子を提供する。また、本発明の一態様は、新規の複素環化合物を提供する。また、この新規の複素環化合物を適用することにより、長寿命な発光素子、さらには長寿命で発光効率の高い発光素子を提供する。また、本発明の一態様は、この発光素子を用いた発光装置、電子機器、及び照明装置を提供する。

【課題を解決するための手段】

【0017】

本発明の一態様は、耐熱性に優れた新規の複素環化合物の合成であり、得られた新規の複素環化合物を用いた長寿命な発光素子である。また、本発明の別のー態様は、発光素子の発光層において、上述した新規の複素環化合物である第1の有機化合物と、別の材料である第2の有機化合物と、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質と、を含み、第1の有機化合物と第2の有機化合物とを組み合わせることにより、励起錯体（エキサイプレックス）を生成し、励起錯体からのエネルギーにより、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質からの発光が得られるという発光素子である。なお、生成された励起錯体は、励起錯体形成前のそれぞれの物質（第1の有機化合物および第2の有機化合物）におけるS1準位とT1準位の差に比べ、S1準位とT1準位が非常に近接した位置にある。従って、励起錯体の発光スペクトルと、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質との吸収スペクトルとの重なりを大きくすることができるため、励起錯体のT1準位から三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質へのエネルギーの移動効率を高める

40

50

ことにより、発光素子の発光効率を高めることを特徴とする。

【0018】

すなわち、本発明の一態様は、一対の電極間に、1つのピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含む第1の有機化合物と、芳香族アミンである第2の有機化合物と、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質と、を含む層を有することを特徴とする発光素子である。また、1つのピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含む第1の有機化合物と、芳香族アミンである第2の有機化合物は、励起錯体を形成する組み合わせであることを特徴とする。

【0019】

また、本発明の一態様は、一対の電極間に、1つのピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含み、かつ分子量が400以上1200以下である第1の有機化合物と、芳香族アミンである第2の有機化合物と、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質と、を有する層を含むことを特徴とする発光素子である。また、1つのピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含み、かつ分子量が400以上1200以下である第1の有機化合物と、芳香族アミンである第2の有機化合物は、励起錯体を形成する組み合わせであることを特徴とする。

10

【0020】

また、上記各構成において、第1の有機化合物に含まれる正孔輸送性骨格を有する環としては、カルバゾール環、ジベンゾチオフェン環や、ジベンゾフラン環が挙げられる。

20

【0021】

また、上記各構成における第1の有機化合物は、電子輸送性が高いため、電子輸送層、電子注入層、または発光層に用いることができる。

【0022】

また、上記各構成において、正孔輸送性骨格を有する環は、カルバゾール環、ジベンゾチオフェン環、またはジベンゾフラン環のいずれかであることを特徴とする。

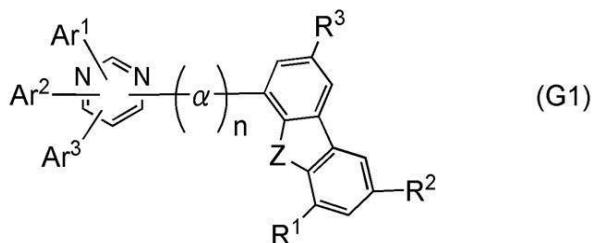
【0023】

また、本発明の一態様は、下記一般式(G1)で表される複素環化合物である。なお、下記一般式(G1)で表される複素環化合物は、上記各構成における第1の有機化合物として用いることができる。

【0024】

30

【化1】



40

【0025】

但し、式中、Ar¹～Ar³は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基のいずれかを表し、R¹～R³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、のいずれかを表す。また、Zは置換または無置換のフェニレン基を表し、nは、2または3を表す。また、Zは酸素または硫黄を表す。

【0026】

なお、上記構成において、で表されるフェニレン基は、o-フェニレン基、m-フェニレン基、またはp-フェニレン基であることを特徴とする。

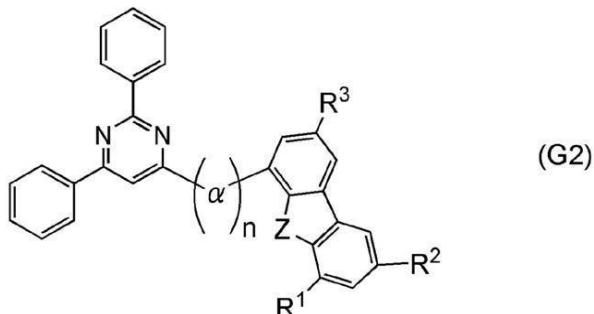
【0027】

50

また、本発明の一態様は、下記一般式 (G2) で表される複素環化合物である。なお、下記一般式 (G2) で表される複素環化合物は、上記各構成における第1の有機化合物として用いることができる。

【0028】

【化2】



【0029】

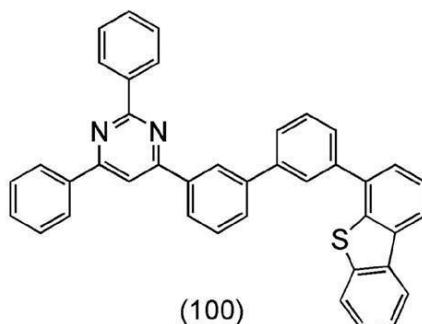
但し、式中、R¹ ~ R³ は、それぞれ独立に、水素、炭素数1 ~ 4のアルキル基、又は炭素数6 ~ 13の置換もしくは無置換のアリール基、のいずれかを表す。また、Zは置換または無置換のフェニレン基を表し、nは、2または3を表す。また、Zは酸素または硫黄を表す。

【0030】

また、本発明の一態様は、下記構造式(100)で表される複素環化合物である。なお、構造式(100)で表される複素環化合物は、上記一般式(G1)および上記一般式(G2)で表される構成に含まれる。

【0031】

【化3】



【0032】

また、本発明の一態様は、下記構造式(101)で表される複素環化合物である。なお、構造式(101)で表される複素環化合物は、上記一般式(G1)および上記一般式(G2)で表される構成に含まれる。

【0033】

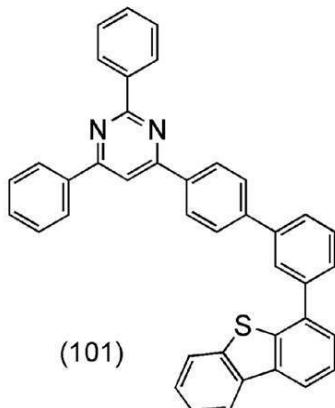
10

20

30

40

【化4】



10

【0034】

本発明の一態様として上述した、上記一般式(G1)および上記一般式(G2)で表される複素環化合物は、耐熱性に優れていることから、これらの材料を発光素子に用いることで長寿命な発光素子を形成することができる。

【0035】

また、本発明の一態様は、発光素子を有する発光装置の他、発光装置を有する電子機器および照明装置も範疇に含める。従って、本明細書中における発光装置とは、画像表示デバイス、もしくは光源(照明装置含む)を指す。また、発光装置にコネクター、例えばFPC(Flexible printed circuit)、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、または発光素子に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。

20

【発明の効果】

【0036】

本発明の一態様により、耐熱性に優れ、駆動電圧が低く、長寿命な発光素子を提供することができる。また、本発明の一態様により、耐熱性に優れ、発光効率の高い発光素子を提供することができる。また、本発明の一態様により、新規の複素環化合物を提供することができる。なお、この新規の複素環化合物を適用することにより、耐熱性に優れた長寿命な発光素子を提供することができる。また、この新規の複素環化合物を適用することにより、長寿命で発光効率の高い発光素子を提供することもできる。また、本発明の一態様は、上述した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ができる。

30

【図面の簡単な説明】

【0037】

【図1】本発明の一態様の概念を説明する図。

40

【図2】発光素子の構造について説明する図。

【図3】発光素子の構造について説明する図。

【図4】発光素子の構造について説明する図。

【図5】発光装置について説明する図。

【図6】電子機器について説明する図。

【図7】電子機器について説明する図。

【図8】照明器具について説明する図。

【図9】構造式(100)に示す複素環化合物の¹H-NMRチャート。

【図10】構造式(100)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。

【図11】構造式(101)に示す複素環化合物の¹H-NMRチャート。

50

【図12】構造式(101)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。

【図13】発光素子について説明する図。

【図14】発光素子1および発光素子2の電流密度-輝度特性を示す図。

【図15】発光素子1および発光素子2の電圧-輝度特性を示す図。

【図16】発光素子1および発光素子2の輝度-電流効率特性を示す図。

【図17】発光素子1および発光素子2の電圧-電流効率特性を示す図。

【図18】発光素子1および発光素子2の信頼性を示す図。

【図19】構造式(112)に示す複素環化合物の¹H-NMRチャート。

【図20】構造式(112)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。

【図21】構造式(112)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。

10

【図22】構造式(121)に示す複素環化合物の¹H-NMRチャート。

【図23】構造式(121)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。

【図24】発光素子3および発光素子4の電流密度-輝度特性を示す図。

【図25】発光素子3および発光素子4の電圧-輝度特性を示す図。

【図26】発光素子3および発光素子4の輝度-電流効率特性を示す図。

【図27】発光素子3および発光素子4の電圧-電流効率特性を示す図。

【図28】発光素子4の信頼性を示す図。

【発明を実施するための形態】

【0038】

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が可能である。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。

20

【0039】

(実施の形態1)

本実施の形態では、本発明の一態様である複素環化合物について説明する。

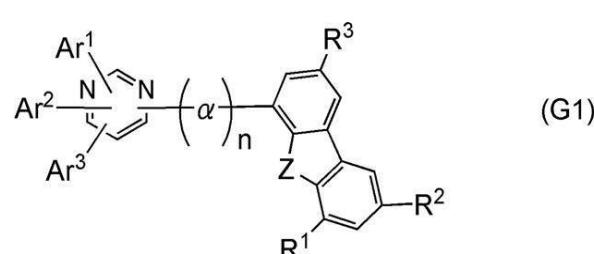
【0040】

本発明の一態様である複素環化合物は、1つのピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含む複素環化合物である。なお、本実施の形態で説明するピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含む複素環化合物は、下記一般式(G1)で表される構造を有する複素環化合物である。

30

【0041】

【化5】



40

【0042】

一般式(G1)において、Ar¹～Ar³は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基のいずれかを表し、R¹～R³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、のいずれかを表す。また、Zは置換または無置換のフェニレン基を表し、nは、2または3を表す。また、Zは酸素または硫黄を表す。なお、で表されるフェニレン基は、o-フェニレン基、m-フェニレン基、またはp-フェニレン基である。

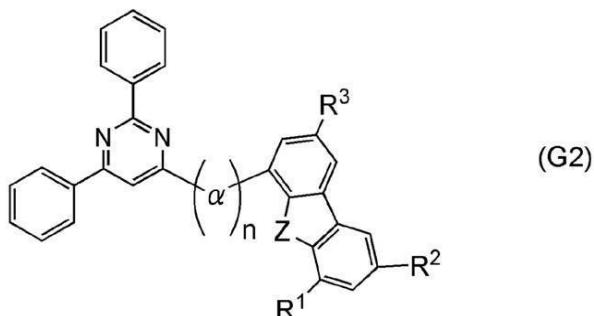
50

【0043】

なお、本発明の一態様である複素環化合物は、上記一般式（G1）におけるAr¹～Ar³のうち、2つがフェニル基であり、一つが水素であるという、下記一般式（G2）で表される構造とすることにより合成を容易にすることができるため、より好ましい。

【0044】

【化6】



【0045】

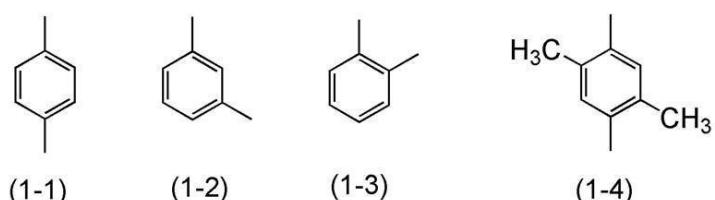
一般式（G2）において、R¹～R³は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基、のいずれかを表す。また、Zは置換または無置換のフェニレン基を表し、nは、2または3を表す。また、Zは酸素または硫黄を表す。

【0046】

一般式（G1）または（G2）中における（ ）_n（但し、nは、2または3）の具体的な構造としては、例えば、構造式（1-1）～構造式（1-4）に示す置換基が挙げられる。

【0047】

【化7】



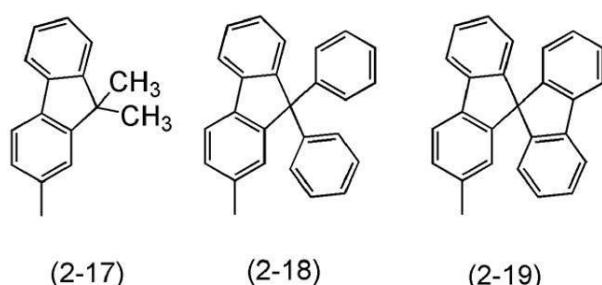
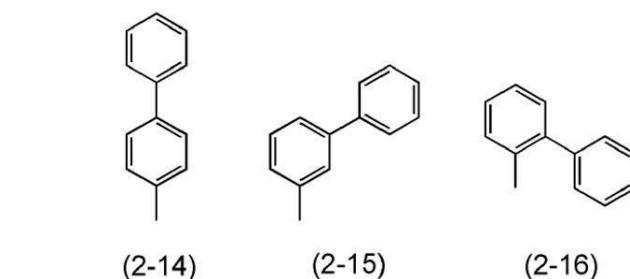
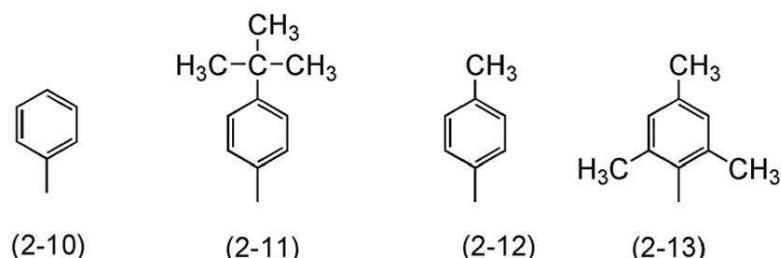
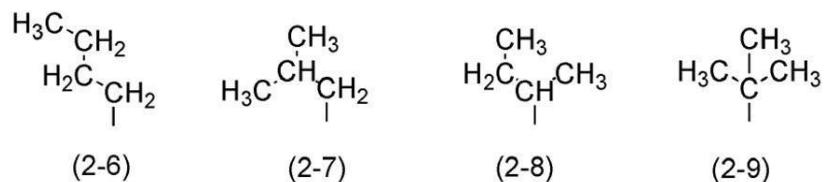
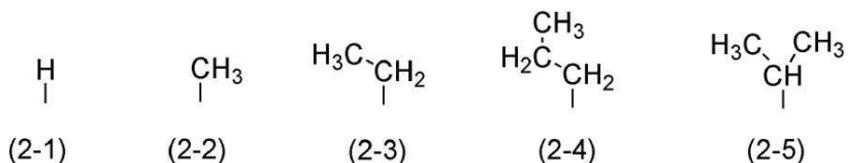
【0048】

一般式（G1）または（G2）中におけるAr¹～Ar³、R¹～R³の具体的な構造としては、例えば、構造式（2-1）～構造式（2-19）に示す置換基が挙げられる。

【0049】

40

【化8】

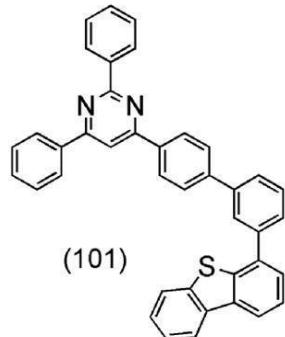
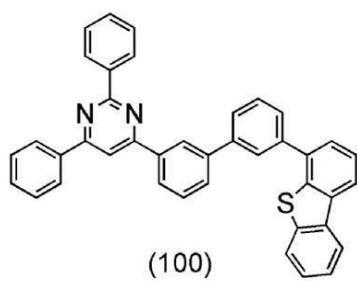


【0050】

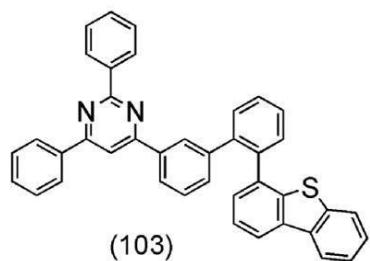
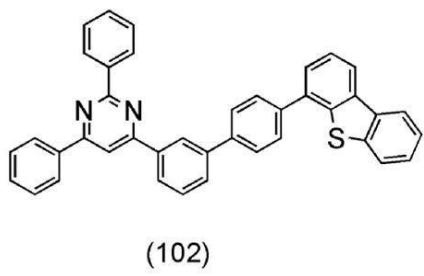
本発明の一態様に用いることができる複素環化合物の具体例としては、構造式(100)～構造式(120)に示される複素環化合物を挙げることができる。但し、本発明はこれらに限定されない。

【0051】

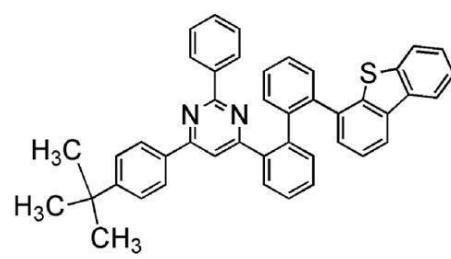
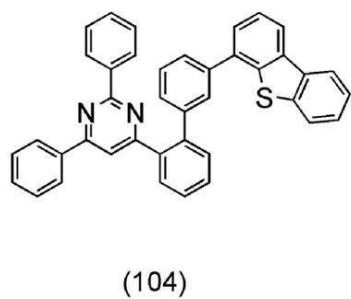
【化9】



10



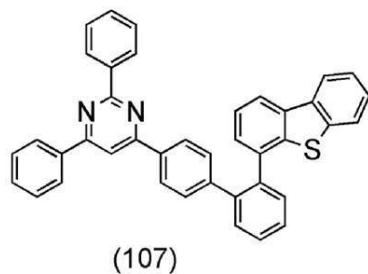
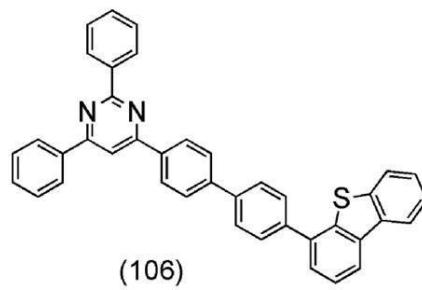
20



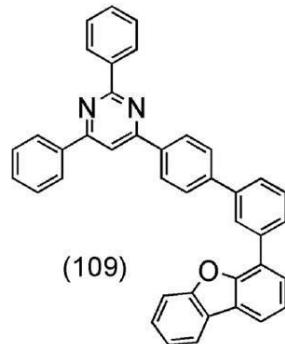
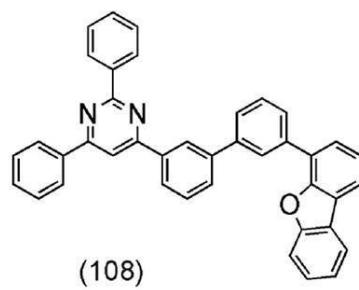
30

【0052】

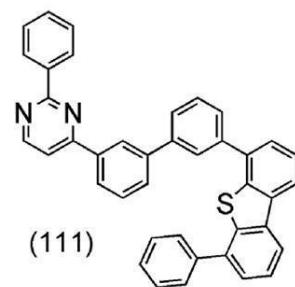
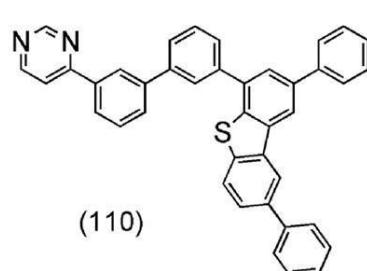
【化 10】



10



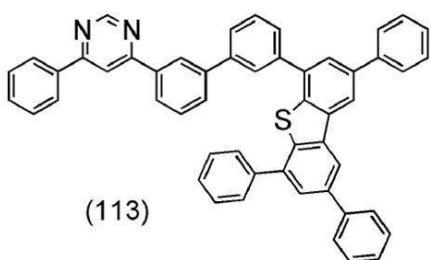
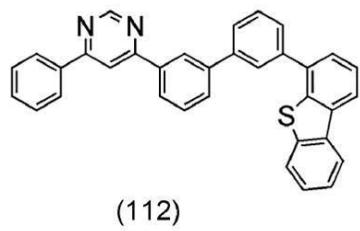
20



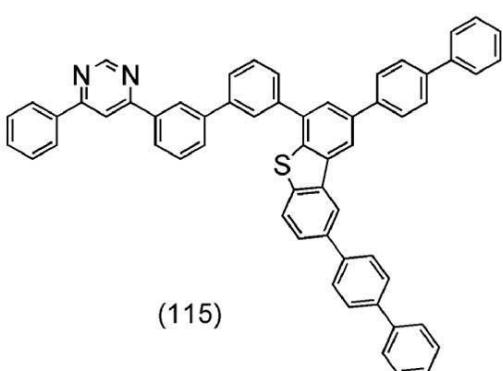
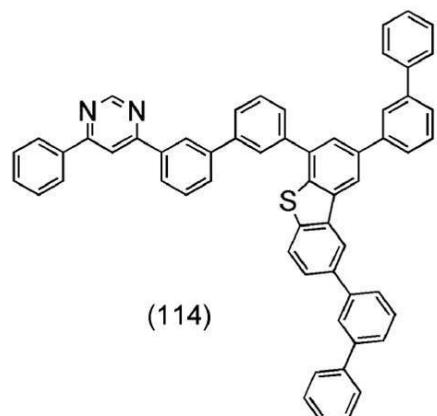
30

【 0 0 5 3 】

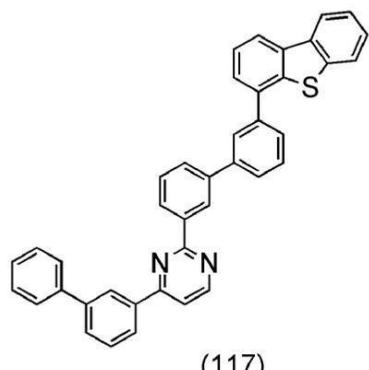
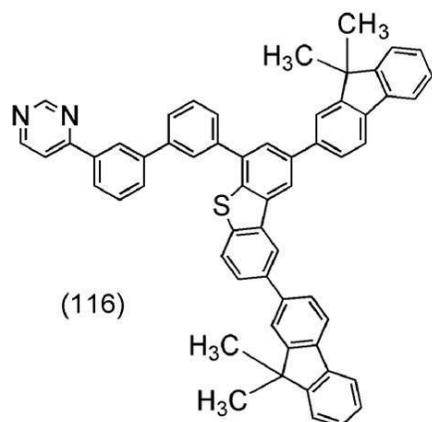
【化 11】



10



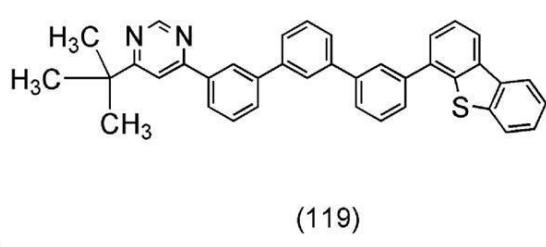
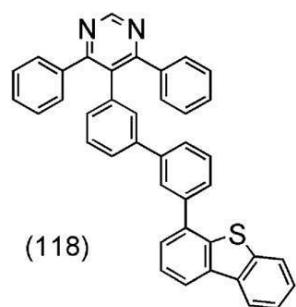
20



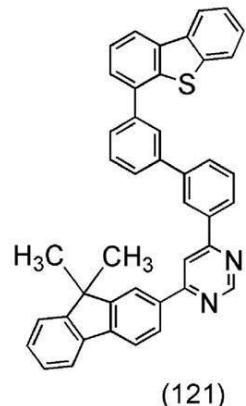
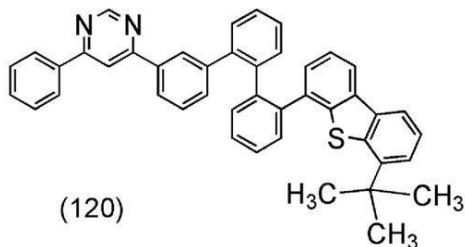
30

【 0 0 5 4 】

【化12】



10



20

【0055】

本発明の一態様の複素環化合物の合成方法としては、種々の反応を適用することができる。例えば、以下に示す反応を行うことによって、一般式 (G1) で表される本発明の一態様の複素環化合物を合成することができる。なお、本発明の一態様である複素環化合物の合成方法は、以下の合成方法に限定されない。

【0056】

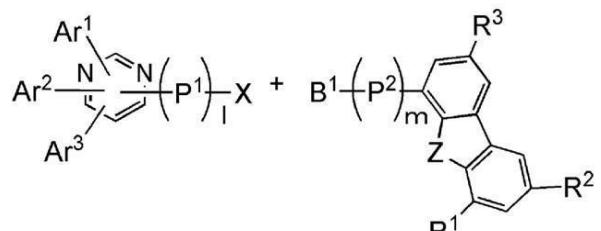
一般式 (G1) で表される複素環化合物の合成方法

一般式 (G1) で表される複素環化合物の合成スキーム (A) を以下に示す。

30

【0057】

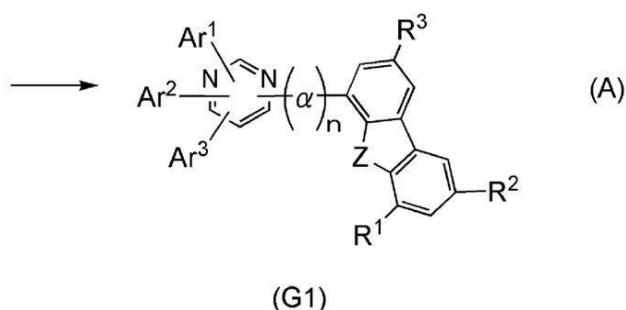
【化13】



(a1)

(a2)

10



(G1)

20

【0058】

一般式 (G1)において、Ar¹ ~ Ar³は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~4のアルキル基、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基のいずれかを表し、R¹ ~ R³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、のいずれかを表す。また、Zは置換または無置換のフェニレン基を表し、nは、2または3を表す。また、Zは酸素または硫黄を表す。

【0059】

一般式 (G1) で表される複素環化合物は、合成スキーム (A) に示すように、ピリミジン誘導体のハロゲン化合物 (a1) とジベンゾチオフェンもしくはジベンゾフラン、もしくはその誘導体のボロン酸化合物 (a2) を反応させることにより得られる。なお、式中Xはハロゲン元素を表す。また、P¹およびP²は置換または無置換のフェニレン基を表す。また、1+mは、nであり、2または3を表す。また、B¹はボロン酸またはボロン酸エステルまたは環状トリオールボレート塩等を表す。環状トリオールボレート塩はリチウム塩の他に、カリウム塩、ナトリウム塩を用いても良い。

【0060】

なお、ピリミジン誘導体のボロン酸化合物とジベンゾチオフェンもしくはジベンゾフラン、もしくはその誘導体のハロゲン化合物を反応させても良い。

【0061】

上述の化合物 (a1)、(a2)は、様々な種類が市販されているか、あるいは合成可能であるため、一般式 (G1) で表されるピリミジン誘導体は数多くの種類を合成することができる。したがって、本発明の一態様である複素環化合物は、バリエーションが豊富であるという特徴がある。

【0062】

以上によって、本発明の一態様である複素環化合物を合成することができる。

【0063】

本実施の形態で説明した本発明の一態様である複素環化合物は、耐熱性に優れているため、これらの材料を用いて発光素子を作製することにより、長寿命の発光素子を実現することができる。また、本発明の一態様である複素環化合物は、電子輸送性の高い物質であ

30

40

50

るため、発光素子における電子注入層、電子輸送層、または発光層の材料として好適に用いることができる。また、本発明の一態様である複素環化合物を別の材料と組み合わせて励起錯体を形成させる構成を有する発光素子に用いることで、長寿命であると共に発光効率の高い発光素子を実現することができる。

【0064】

(実施の形態2)

本実施の形態では、励起錯体(エキサイプレックス)を利用した発光素子に実施の形態1で説明した本発明の一態様である複素環化合物を適用する場合の概念、および具体的な発光素子の構成について説明する。

【0065】

なお、本実施の形態で説明する発光素子は、一对の電極間に発光層を挟んで形成されており、発光層は、第1の有機化合物と、第2の有機化合物と、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質を含んで形成される。また、第1の有機化合物と第2の有機化合物とは、励起錯体を形成することができる組み合わせであり、発光層において、励起錯体からのエネルギー移動により、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質が発光する。

【0066】

ここで、本発明の一態様における発光素子の発光層において形成される励起錯体の形成過程について説明する。形成過程としては、以下の2つの過程が考えられる。

【0067】

1つ目の形成過程は、電子輸送性を有する第1の有機化合物(例えば、ホスト材料)及び上記一般式(G1)で表される骨格を有する第2の有機化合物がキャリアを持った状態(カチオン又はアニオン)から、励起錯体を形成する形成過程である。なお、このような形成過程の場合には、第1の有機化合物および第2の有機化合物からの一重項励起子の形成を抑制できるため、寿命が長い発光素子を実現することができる。

【0068】

2つ目の形成過程は、電子輸送性を有する第1の有機化合物(例えば、ホスト材料)及び上記一般式(G1)で表される骨格を有する第2の有機化合物の一方が一重項励起子を形成した後、基底状態の他方と相互作用して励起錯体を形成する素過程である。この場合は一旦、第1の有機化合物又は第2の有機化合物の一重項励起状態が生成してしまうが、これは速やかに励起錯体に変換されるため、この場合でも一重項励起エネルギーの失活や、一重項励起状態からの反応等を抑制することができ、寿命が長い発光素子を実現することができる。

【0069】

なお、本発明の一態様である発光素子においては、上記2種類の形成過程のいずれの場合で形成された励起錯体も含むこととする。

【0070】

また、本発明の一態様である発光素子の発光層において、上記に示す形成過程を経て形成された励起錯体の準位の形成と、発光に至るプロセスについて図1に示す。すなわち、図1に示すように、発光素子の発光層において形成された励起錯体10は、励起錯体形成前のそれぞれの物質(第1の有機化合物および第2の有機化合物)におけるS1準位とT1準位の差に比べ、S1準位とT1準位が非常に近接した位置にある。したがって、発光層に含まれる三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質11の吸収スペクトルと、発光層において形成された励起錯体の発光スペクトルと、の重なりを大きくすることにより、励起錯体で生じたT1だけでなく、S1のエネルギーをも効率よく三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質に移動させることができる。その結果、発光素子の発光効率を非常に高めることができる。

【0071】

次に、本発明の一態様である発光素子の素子構造について、図2により説明する。

【0072】

10

20

30

40

50

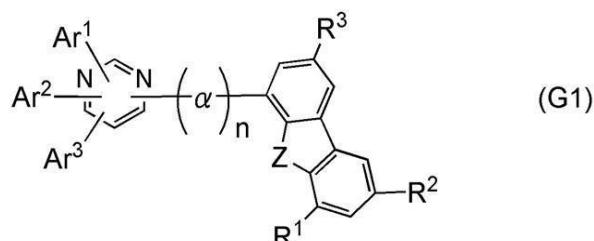
図2に示すように本発明の一態様である発光素子は、一対の電極（陽極101、陰極102）間に、1つのピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含む第1の有機化合物105、芳香族アミンである第2の有機化合物106、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質107と、を含む発光層104が挟まれた構造を有する。発光層104は、一対の電極と接するEL層103を構成する機能層の一部である。また、EL層103には、発光層104の他に、正孔（ホール）注入層、正孔（ホール）輸送層、電子輸送層、電子注入層等を適宜選択して所望の位置に形成することができる。

〔 0 0 7 3 〕

上記、1つのピリミジン環および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含む第1の有機化合物105は、本発明の一態様である複素環化合物であり、下記一般式(G1)で表される構造を有する。

〔 0 0 7 4 〕

【化 1 4】



【 0 0 7 5 】

式中、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^3$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基のいずれかを表し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^3$ 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、のいずれかを表す。また、 Z は置換または無置換のフェニレン基を表し、 n は、2 または 3 を表す。また、 Z は酸素または硫黄を表す。

【 0 0 7 6 】

なお、上記一般式（G1）で示される第1の有機化合物の具体例としては、実施の形態1で説明したので、該当箇所を参照することとし、ここでの説明は省略する。

【 0 0 7 7 】

また、芳香族アミンである第2の有機化合物106としては、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:BPAFLP)、4-フェニル-3'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン(略称:mBPAFLP)、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)、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:PCCBBi1BP)、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) ピフェニル(略称: C B P)、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: C z T P)、3, 3' - ビス(9 - フェニル - 9 H - カルバゾール) (略称: P C C P) などのカルバゾール骨格を有する化合物があげられる。

【 0 0 7 8 】

なお、上記、第1の有機化合物105、および第2の有機化合物106は、上述した物質に限らず、励起錯体を形成することができる組み合わせであれば良い。

【 0 0 7 9 】

また、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質107としては、熒光性化合物(有機金属錯体等) や、熱活性化遅延蛍光(T A D F) 材料等であることが好ましい。

【 0 0 8 0 】

なお、上記有機金属錯体としては、例えば、ビス[2 - (4' , 6' - ジフルオロフェニル) ピリジナト - N , C²] イリジウム(I I I) テトラキス(1 - ピラゾリル) ボラート(略称: F I r 6)、ビス[2 - (4' , 6' - ジフルオロフェニル) ピリジナト - N , C²] イリジウム(I I I) ピコリナート(略称: F I r p i c)、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 , C² } イリジウム(I I I) ピコリナート(略称: I r (C F₃ p p y)₂ (p i c))、ビス[2 - (4' , 6' - ジフルオロフェニル) ピリジナト - N , C²] イリジウム(I I I) アセチルアセトナート(略称: F I r a c a c)、トリス(2 - フェニルピリジナト) イリジウム(I I I)(略称: I r (p p y)₃)、ビス(2 - フェニルピリジナト) イリジウム(I I I) アセチルアセトナート(略称: I r (p p y)₂ (a c a c))、ビス(ベンゾ[h] キノリナト) イリジウム(I I I) アセチルアセトナート(略称: I r (b z q)₂ (a c a c))、ビス(2, 4 - ジフェニル - 1, 3 - オキサゾラト - N , C²) イリジウム(I I I) アセチルアセトナート(略称: I r (d p o)₂ (a c a c))、ビス{ 2 - [4' - (パーフルオロフェニル) フェニル] ピリジナト - N , C² } イリジウム(I I I) アセチルアセトナート(略称: I r (p - P F - p h)₂ (a c a c))、ビス(2 - フェニルベンゾチアゾラト - N , C²) イリジウム(I I I) アセチルアセトナート(略称: I r (b t)₂ (a c a c))、ビス[2 - (2' - ベンゾ[4, 5 -] チエニル) ピリジナト - N , C³] イリジウム(I I I) アセチルアセトナート(略称: I r (b t p)₂ (a c a c))、ビス(1 - フェニルイソキノリナト - N , C²) イリジウム(I I I) アセチルアセトナート(略称: I r (p i q)₂ (a c a c))、(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(I I I)(略称: I r (F d p q)₂ (a c a c))、(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(I I I)(略称: I r (t p p r)₂ (a c a c))、2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18 - オクタエチル - 21H, 23H - ポルフィリン白金(I I)(略称: P t O E P)、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(I I I)(略称: T b (a c a c)₃ (P h e n))、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) ヨーロピウム(I I I)(略称: E u (D B M)₃ (P h e n))、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) ヨーロピウム(I I I)(略称: E u (T T A)₃ (P h e n)) などが挙げられる。

【 0 0 8 1 】

本実施の形態で説明した本発明の一態様である発光素子は、本発明の一態様である耐熱性に優れた複素環化合物を発光層に用いると共に、発光層において、芳香族アミンである第2の有機化合物との組み合わせにより励起錯体を形成することができるため、励起錯体から三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質へのエネルギーの移動効率を高めることができるため、長寿命であると共に発光効率の高い発光素子を実現することができる。

【 0 0 8 2 】

10

20

30

40

50

(実施の形態 3)

本実施の形態では、本発明の一態様である発光素子の一例について図3を用いて説明する。

【0083】

本実施の形態に示す発光素子は、図3に示すように一対の電極（第1の電極（陽極）201と第2の電極（陰極）202）間に発光層206を含むEL層203が挟まれており、EL層203は、発光層206の他に、正孔（または、ホール）注入層204、正孔（または、ホール）輸送層205、電子輸送層207、電子注入層208などを含んで形成される。

【0084】

また、発光層206は、実施の形態2で説明した発光素子と同様に、実施の形態1で説明した複素環化合物である第1の有機化合物209と、芳香族アミンである第2の有機化合物210と、三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質211と、を含んで形成される。なお、第1の有機化合物209、第2の有機化合物210、および三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質211は、実施の形態1または実施の形態2で示したものと同じ物質を用いることができるため、説明は省略する。

【0085】

第1の電極（陽極）201および第2の電極（陰極）202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）、珪素若しくは酸化珪素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（Indium Zinc Oxide）、酸化タンゲ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）、タンゲステン（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（MgAg、AlLi）、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（陽極）201および第2の電極（陰極）202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。

【0086】

正孔注入層204および正孔輸送層205に用いる正孔輸送性の高い物質としては、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または-NPD）や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',4'''-トリス(カルバゾール-9-イル)トリフェニルアミン（略称:TCTA）、4,4',4'''-トリス(N,N-ジフェニルアミノ)トリフェニルアミン（略称:TDATA）、4,4',4'''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン（略称: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、3-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称:PCzPCA1）、3,6-ビス[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称:PCzPCA2）、3-[N-(1-ナフチル)-N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)アミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称:PCzPCN1）等が挙げられる。その他、4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル（略称:CBP）、1,3,5-トリス[4-(N-カルバゾリル)フェニル]ベンゼン（略称:TCPB）、9-[4-(10-フェニル-9-アントラセニル)フェニル]-9H-カルバゾール（略称:CzPA）等のカルバゾール誘導体、等を用いることができる。ここ

10

20

30

40

50

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物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。

【0087】

さらに、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。

【0088】

また、正孔注入層 204 に用いることができ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ができる。具体的には、酸化モリブデンが特に好ましい。

【0089】

発光層 206 は、上述した通りであり、電子輸送性を有する第1の有機化合物 209 と、一般式(G1)で表される骨格を有する第2の有機化合物 210 と、を含み(三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質をさらに含んでも良い)形成される。

【0090】

電子輸送層 207 は、電子輸送性の高い物質を含む層である。電子輸送層 207 には、 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) 、 BAlq 、 Zn(BOX)₂ 、ビス[2 - (2 - ヒドロキシフェニル) ベンゾチアゾラト] 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 - ジオクチルフルオレン - 2 , 7 - ジイル) - co - (2 , 2 ' - ピピリジン - 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 207 に用いてもよい。

【0091】

また、電子輸送層 207 は、単層のものだけでなく、上記物質からなる層が二層以上積層したものとしてもよい。

【0092】

電子注入層 208 は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入層 208 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(LiOx)等のようなアルカリ金属、アルカリ土類金属、またはそれら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 207 を構成する物質を用いることもできる。

【0093】

10

20

30

30

40

50

あるいは、電子注入層 208 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 207 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、テトラチアフルバレン（略称：TTF）等の有機化合物を用いることもできる。10

【0094】

なお、上述した正孔注入層 204、正孔輸送層 205、発光層 206、電子輸送層 207、電子注入層 208 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。

【0095】

上述した発光素子の発光層 206 で得られた発光は、第 1 の電極 201 および第 2 の電極 202 のいずれか一方または両方を通り出される。従って、本実施の形態における第 1 の電極 201 および第 2 の電極 202 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。20

【0096】

本実施の形態では、発光素子の発光層において、本発明の一態様である複素環化合物を適用した第 1 の有機化合物 209 および第 2 の有機化合物 210 とから励起錯体が生成され、生成された励起錯体から三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質 211 へのエネルギーの移動効率を高めることができるために、長寿命であると共に発光効率の高い発光素子を実現することができる。

【0097】

なお、本実施の形態で示した発光素子は、本発明の一態様であり、特に発光層の構成に特徴を有する。従って、本実施の形態で示した構成を適用することで、パッシブマトリクス型の発光装置やアクティブマトリクス型の発光装置などを作製することができ、これらは、いずれも本発明に含まれるものとする。30

【0098】

なお、アクティブマトリクス型の発光装置の場合において、TFT の構造は、特に限定されない。例えば、スタガ型や逆スタガ型の TFT を適宜用いることができる。また、TFT 基板に形成される駆動用回路についても、N 型および P 型の TFT からなるものでもよいし、N 型の TFT または P 型の TFT のいずれか一方のみからなるものであってもよい。さらに、TFT に用いられる半導体膜の結晶性についても特に限定されない。例えば、非晶質半導体膜、結晶性半導体膜、その他、酸化物半導体膜等を用いることができる。40

【0099】

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。

【0100】

（実施の形態 4）

本実施の形態では、本発明の一態様として、電荷発生層を挟んで EL 層を複数有する構造の発光素子（以下、タンデム型発光素子という）について説明する。

【0101】

本実施の形態に示す発光素子は、図 4 (A) に示すように一対の電極（第 1 の電極 301 および第 2 の電極 304）間に、複数の EL 層（第 1 の EL 層 302 (1)、第 2 の EL 層 302 (2)）を有するタンデム型発光素子である。50

【0102】

本実施の形態において、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304は陰極として機能する電極である。なお、第1の電極301および第2の電極304は、実施の形態1と同様な構成を用いることができる。また、複数のEL層（第1のEL層302（1）、第2のEL層302（2））は、実施の形態1または実施の形態2で示したEL層と同様な構成であっても良いが、いずれかが同様の構成であっても良い。すなわち、第1のEL層302（1）と第2のEL層302（2）は、同じ構成であっても異なる構成であってもよく、その構成は実施の形態1または実施の形態2と同様なものを適用することができる。

【0103】

10

また、複数のEL層（第1のEL層302（1）、第2のEL層302（2））の間に、電荷発生層305が設けられている。電荷発生層305は、第1の電極301と第2の電極304に電圧を印加したときに、一方のEL層に電子を注入し、他方のEL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301に第2の電極304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305から第1のEL層302（1）に電子が注入され、第2のEL層302（2）に正孔が注入される。

【0104】

なお、電荷発生層305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305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305は、第1の電極301や第2の電極304よりも低い導電率であっても機能する。

20

【0105】

電荷発生層305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。

【0106】

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、N P BやT P D、T D A T A、M T D A T A、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：B S P B）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。

30

【0107】

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：F 4 - T C N Q）、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、酸化タンゲステン、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。

40

【0108】

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、A l q、A l m q₃、B e B q₂、B A l q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、Z n (B O X)₂、Z n (B T Z)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、P B DやO X D - 7、T A Z、B P h e n、B C P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

50

い。

【0109】

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(Ind)、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。

【0110】

なお、上述した材料を用いて電荷発生層305を形成することにより、EL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。

10

【0111】

本実施の形態では、EL層を2層有する発光素子について説明したが、図4(B)に示すように、n層(ただし、nは、3以上)のEL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、一対の電極間に複数のEL層を有する場合、EL層とEL層との間に電荷発生層を配置することで、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。

20

【0112】

また、それぞれのEL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EL層を有する発光素子において、第1のEL層の発光色と第2のEL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。

【0113】

また、3つのEL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EL層の発光色が赤色であり、第2のEL層の発光色が緑色であり、第3のEL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。

30

【0114】

さらに、本実施の形態に示したEL層が電荷発生層を介して積層された構成に加えて、電極(第1の電極301および第2の電極304)間の距離を所望のものとすることにより、光の共振効果を利用した微小光共振器(マイクロキャビティ)構造を有する発光素子としても良い。

【0115】

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と適宜組み合わせて用いることができる。

【0116】

40

(実施の形態5)

本実施の形態では、本発明の一態様である発光素子を有する発光装置について説明する。

【0117】

なお、発光素子としては、他の実施形態で説明した発光素子を適用することができる。また、発光装置としては、パッシブマトリクス型の発光装置、アクティブマトリクス型の発光装置のいずれでもよいが、本実施の形態では、アクティブマトリクス型の発光装置について図5を用いて説明する。

【0118】

なお、図5(A)は発光装置を示す上面図であり、図5(B)は図5(A)を鎖線A-

50

A'で切断した断面図である。本実施の形態に係るアクティブマトリクス型の発光装置は、素子基板501上に設けられた画素部502と、駆動回路部（ソース線駆動回路）503と、駆動回路部（ゲート線駆動回路）504a、504bと、を有する。画素部502、駆動回路部503、及び駆動回路部504a、504bは、シール材505によって、素子基板501と封止基板506との間に封止されている。

【0119】

また、素子基板501上には、駆動回路部503、及び駆動回路部504a、504bに外部からの信号（例えば、ビデオ信号、クロック信号、スタート信号、又はリセット信号等）や電位を伝達する外部入力端子を接続するための引き回し配線507が設けられる。ここでは、外部入力端子としてFPC（フレキシブルプリントサーキット）508を設ける例を示している。なお、ここではFPC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もしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

10

【0120】

次に、断面構造について図5（B）を用いて説明する。素子基板501上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、ここでは、ソース線駆動回路である駆動回路部503と、画素部502が示されている。

【0121】

駆動回路部503はnチャネル型TFT509とpチャネル型TFT510とを組み合わせたCMOS回路が形成される例を示している。なお、駆動回路部を形成する回路は、種々のCMOS回路、PMOS回路もしくは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一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に駆動回路を形成することもできる。

20

【0122】

また、画素部502はスイッチング用TFT511と、電流制御用TFT512と電流制御用TFT512の配線（ソース電極又はドレイン電極）に電気的に接続された第1の電極（陽極）513とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極（陽極）513の端部を覆って絶縁物514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を用いることにより形成する。

30

【0123】

また、上層に積層形成される膜の被覆性を良好なものとするため、絶縁物514の上端部または下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにするのが好ましい。例えば、絶縁物514の材料としてポジ型の感光性アクリル樹脂を用いた場合、絶縁物514の上端部に曲率半径（0.2μm～3μm）を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物514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、有機化合物に限らず無機化合物、例えば、酸化シリコン、酸窒化シリコン等、の両者を使用することができる。

【0124】

第1の電極（陽極）513上には、EL層515及び第2の電極（陰極）516が積層され、発光素子517が形成されている。なお、EL層515は、少なくとも実施の形態1で説明した発光層を有している。また、EL層515には、発光層の他に正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、電荷発生層等を適宜設けることができる。

40

【0125】

また、第1の電極（陽極）513、EL層515及び第2の電極（陰極）516に用いる材料としては、実施の形態2に示す材料を用いることができる。また、ここでは図示しないが、第2の電極（陰極）516は、外部入力端子であるFPC508に電気的に接続されている。

【0126】

また、図5（B）に示す断面図では発光素子517を1つのみ図示しているが、画素部

50

502において、複数の発光素子がマトリクス状に配置されているものとする。画素部502には、3種類(R、G、B)の発光が得られる発光素子をそれぞれ選択的に形成し、フルカラー表示可能な発光装置を形成することができる。また、カラーフィルタと組み合わせることによってフルカラー表示可能な発光装置としてもよい。

【0127】

さらに、シール材505で封止基板506を素子基板501と貼り合わせることにより、素子基板501、封止基板506、およびシール材505で囲まれた空間518に発光素子517が備えられた構造になっている。なお、空間518には、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505で充填される構成も含むものとする。

10

【0128】

なお、シール材505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506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)、ポリエステルまた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。

【0129】

以上のようにして、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。

【0130】

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。

20

【0131】

(実施の形態6)

本実施の形態では、本発明の一態様である発光素子を適用して作製された発光装置を用いて完成させた様々な電子機器の一例について、図6、図7を用いて説明する。

【0132】

発光装置を適用した電子機器として、例えば、テレビジョン装置(テレビ、又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。これらの電子機器の具体例を図6に示す。

30

【0133】

図6(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できる、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。

【0134】

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。

40

【0135】

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。受信機により一般的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。

【0136】

図6(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

50

。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。

【0137】

図 6 (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 6 (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、あるい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ればよく、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ます。図 6 (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 6 (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。

【0138】

図 6 (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。

【0139】

図 6 (D) に示す携帯電話機 7400 は、表示部 7402 を指などで触ることで、情報を入力することができる。また、電話を掛ける、あるいはメールを作成するなどの操作は、表示部 7402 を指などで触ることにより行うことができる。

【0140】

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。

【0141】

例えば、電話を掛ける、ある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が好ましい。

【0142】

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。

【0143】

また、画面モードの切り替えは、表示部 7402 を触ること、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。

【0144】

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。

【0145】

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 7

10

20

30

40

50

402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。

【0146】

図7(A)及び図7(B)は2つ折り可能なタブレット型端末である。図7(A)は、開いた状態であり、タブレット型端末は、筐体9630、表示部9631a、表示部9631b、表示モード切り替えスイッチ9034、電源スイッチ9035、省電力モード切り替えスイッチ9036、留め具9033、操作スイッチ9038、を有する。なお、当該タブレット型端末は、発光装置を表示部9631a、表示部9631bの一方又は両方に用いることにより作製される。

10

【0147】

表示部9631aは、一部をタッチパネルの領域9632aとすることができる、表示された操作キー9637にふれることでデータ入力をすることができる。なお、表示部9631aにおいては、一例として半分の領域が表示のみの機能を有する構成、もう半分の領域がタッチパネルの機能を有する構成を示しているが該構成に限定されない。表示部9631aの全ての領域がタッチパネルの機能を有する構成としても良い。例えば、表示部9631aの全面をキーボードボタン表示させてタッチパネルとし、表示部9631bを表示画面として用いることができる。

【0148】

また、表示部9631bにおいても表示部9631aと同様に、表示部9631bの一部をタッチパネルの領域9632bとすることができます。また、タッチパネルのキーボード表示切り替えボタン9639が表示されている位置に指やスタイルスなどでふれることで表示部9631bにキーボードボタン表示することができる。

20

【0149】

また、タッチパネルの領域9632aとタッチパネルの領域9632bに対して同時にタッチ入力することもできる。

【0150】

また、表示モード切り替えスイッチ9034は、縦表示または横表示などの表示の向きを切り替え、白黒表示やカラー表示の切り替えなどを選択できる。省電力モード切り替えスイッチ9036は、タブレット型端末に内蔵している光センサで検出される使用時の外光の光量に応じて表示の輝度を最適なものとすることができます。タブレット型端末は光センサだけでなく、ジャイロ、加速度センサ等の傾きを検出するセンサなどの他の検出装置を内蔵させててもよい。

30

【0151】

また、図7(A)では表示部9631bと表示部9631aの表示面積が同じ例を示しているが特に限定されず、一方のサイズともう一方のサイズが異なっていてもよく、表示の品質も異なっていてもよい。例えば一方が他方よりも高精細な表示を行える表示パネルとしてもよい。

【0152】

図7(B)は、閉じた状態であり、タブレット型端末は、筐体9630、太陽電池9633、充放電制御回路9634、バッテリー9635、DCDCコンバータ9636を有する。なお、図7(B)では充放電制御回路9634の一例としてバッテリー9635、DCDCコンバータ9636を有する構成について示している。

40

【0153】

なお、タブレット型端末は2つ折り可能なため、未使用時に筐体9630を閉じた状態にすることができる。従って、表示部9631a、表示部9631bを保護できるため、耐久性に優れ、長期使用の観点からも信頼性の優れたタブレット型端末を提供できる。

【0154】

また、この他にも図7(A)及び図7(B)に示したタブレット型端末は、様々な情報(静止画、動画、テキスト画像など)を表示する機能、カレンダー、日付又は時刻などを

50

表示部に表示する機能、表示部に表示した情報をタッチ入力操作又は編集するタッチ入力機能、様々なソフトウェア（プログラム）によって処理を制御する機能、等を有することができる。

【0155】

タブレット型端末の表面に装着された太陽電池9633によって、電力をタッチパネル、表示部、または映像信号処理部等に供給することができる。なお、太陽電池9633は、筐体9630の片面または両面に設けることができ、バッテリー9635の充電を効率的に行う構成とすることができる。なおバッテリー9635としては、リチウムイオン電池を用いると、小型化を図れる等の利点がある。

【0156】

また、図7（B）に示す充放電制御回路9634の構成、及び動作について図7（C）にブロック図を示し説明する。図7（C）には、太陽電池9633、バッテリー9635、DCDCコンバータ9636、コンバータ9638、スイッチSW1乃至SW3、表示部9631について示しており、バッテリー9635、DCDCコンバータ9636、コンバータ9638、スイッチSW1乃至SW3が、図7（B）に示す充放電制御回路9634に対応する箇所となる。

10

【0157】

まず外光により太陽電池9633により発電がされる場合の動作の例について説明する。太陽電池9633で発電した電力は、バッテリー9635を充電するための電圧となるようDCDCコンバータ9636で昇圧または降圧がなされる。そして、表示部9631の動作に太陽電池9633からの電力が用いられる際にはスイッチSW1をオンにし、コンバータ9638で表示部9631に必要な電圧に昇圧または降圧をすることとなる。また、表示部9631での表示を行わない際には、スイッチSW1をオフにし、スイッチSW2をオンにしてバッテリー9635の充電を行う構成とすればよい。

20

【0158】

なお太陽電池9633については、発電手段の一例として示したが、特に限定されず、圧電素子（ピエゾ素子）や熱電変換素子（ペルティエ素子）などの他の発電手段によるバッテリー9635の充電を行う構成であってもよい。例えば、無線（非接触）で電力を送受信して充電する無接点電力伝送モジュールや、また他の充電手段を組み合わせて行う構成としてもよい。

30

【0159】

また、上記実施の形態で説明した表示部を具備していれば、図7に示した電子機器に特に限定されないことは言うまでもない。

【0160】

以上のようにして、本発明の一態様である発光装置を適用して電子機器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。

【0161】

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と適宜組み合わせて用いることができる。

40

【0162】

（実施の形態7）

本実施の形態では、本発明の一態様である発光素子を含む発光装置を適用した照明装置の一例について、図8を用いて説明する。

【0163】

図8は、発光装置を室内の照明装置8001として用いた例である。なお、発光装置は大面積化も可能であるため、大面積の照明装置を形成することもできる。その他、曲面を有する筐体を用いることで、発光領域が曲面を有する照明装置8002を形成することもできる。本実施の形態で示す発光装置に含まれる発光素子は薄膜状であり、筐体のデザインの自由度が高い。したがって、様々な意匠を凝らした照明装置を形成することができる

50

。さらに、室内の壁面に大型の照明装置 8003 を備えても良い。

〔 0 1 6 4 〕

また、発光装置をテーブルの表面に用いることによりテーブルとしての機能を備えた照明装置8004とすることができる。なお、その他の家具の一部に発光装置を用いることにより、家具としての機能を備えた照明装置とすることができる。

【 0 1 6 5 】

以上のように、発光装置を適用した様々な照明装置が得られる。なお、これらの照明装置は本発明の一態様に含まれるものとする。

【 0 1 6 6 】

また、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と適宜組み合わせて用いることができる。 10

【实施例 1】

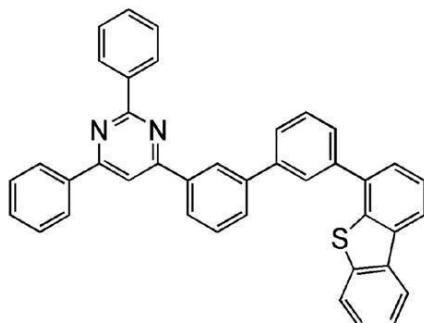
【 0 1 6 7 】

合成例 1

本実施例では、実施の形態1の構造式(100)で表される本発明の一態様である複素環化合物、4-[3'-(4-ジベンゾチエニル)-1,1'-ビフェニル-3-イル]-2,6-ジフェニルピリミジン(略称:2,6Ph-4mDBTBPm-II)の合成方法について説明する。なお、2,6Ph-4mDBTBPm-II(略称)の構造を以下に示す。

【 0 1 6 8 】

【化 1 5 】



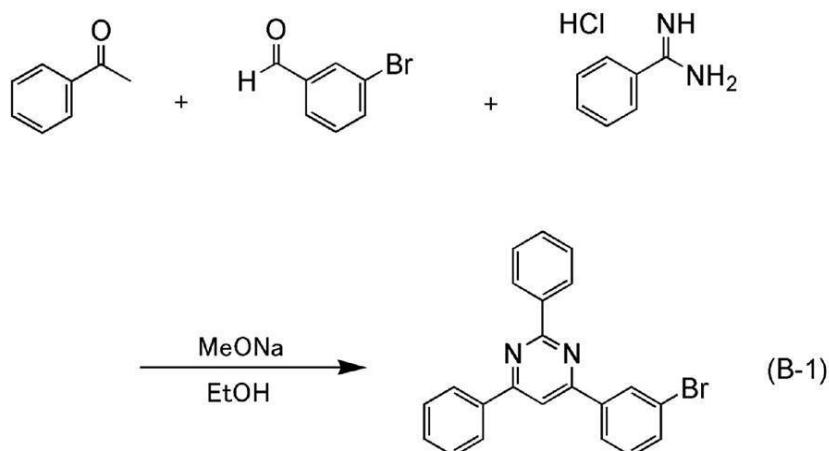
(100)

【 0 1 6 9 】

ステップ1：4-(3-ブロモフェニル)-2,6-ジフェニルピリミジンの合成
4-(3-ブロモフェニル)-2,6-ジフェニルピリミジンの合成スキームを(B-1)に示す。

【 0 1 7 0 】

【化16】



【0171】

500mL三口フラスコに3-ブロモベンズアルデヒド18.5g (100.0mmol)、アセトフェノン12.0g (100.0mmol)を入れ窒素置換し、エタノール100mLを加えた。この混合物に、ナトリウムメトキシド6.0g (111.0mmol)をエタノール100mLに懸濁させた溶液を滴下し、室温で22時間攪拌した。所定時間攪拌後、ベンズアミジン塩酸塩15.6g (100.0mmol)、水酸化ナトリウム8.0g (200.0mmol)を加え70℃で3時間攪拌した。攪拌後混合物をろ過し、ろ物に水を加え超音波洗浄した。固体を吸引ろ過により回収し、白色固体を14.4g、収率38.0%で得た。

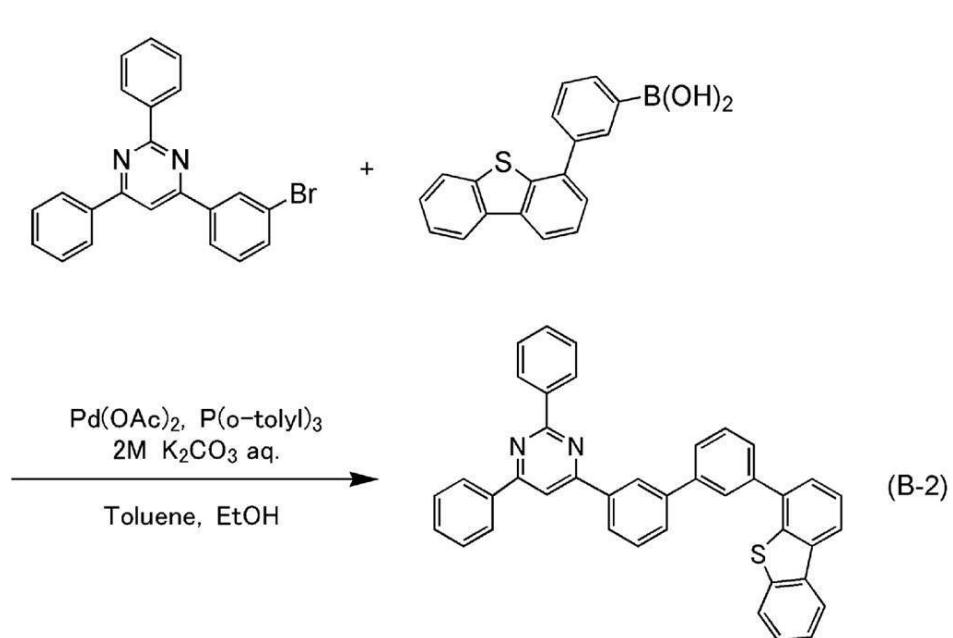
【0172】

ステップ2:2, 6Ph-4mDBTBPm-II (略称)の合成

2, 6Ph-4mDBTBPm-II (略称)の合成スキームを(B-2)に示す。

【0173】

【化17】



【0174】

500mL三口フラスコに4-(3-ブロモフェニル)-2, 6-ジフェニルピリミジン7.75g (20.0mmol)、3-(ジベンズチオフェン-4-イル)フェニルボ

ロン酸 7.60 g (25.0 mmol)、トリス(ο-トリル)ホスフィン 608.7 mg (2.0 mmol)を入れ、この混合物にトルエン 155 mL、エタノール 20 mL、2 M 炭酸カリウム水溶液 25 mL を加えた。この混合物を減圧下で攪拌しながら脱気した後、酢酸パラジウム(II) 224.5 mg (1.0 mmol)を入れ、窒素気流下 80 度 2 時間半加熱攪拌し反応させた。反応後トルエン 1300 mL 加え、分離した。水層をトルエンで抽出し、抽出溶液と有機層を併せて飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。乾燥後、混合物を自然ろ過した。次いで、セライト、アルミナを通してろ過し、ろ液を濃縮した。トルエンで再結晶し、白色固体を 9.64 g、収率 85.1 % で得た。

【0175】

10

上記合成法で得られた化合物の核磁気共鳴分光法(¹H-NMR)による分析結果を下記に示す。また、¹H-NMR チャートを図9に示す。この結果から、上述の構造式(100)で表される本発明の一態様の複素環化合物である 2,6Ph-4mDBTBPm-II(略称)が得られたことがわかった。

【0176】

¹H NMR (CDCl₃, 500 MHz): δ = 7.46 - 7.61 (m, 10H)、7.66 - 7.70 (dt, J = 2.5 Hz, 7.8 Hz, 2H)、7.78 - 7.81 (t, J = 7.7 Hz, 3H)、7.87 - 7.88 (d, J = 8.0 Hz, 1H)、8.01 (s, 1H)、8.14 - 8.15 (t, J = 1.7 Hz, 1H)、8.20 - 8.23 (m, 2H)、8.31 - 8.33 (dd, J = 2.3 Hz, 7.4 Hz, 3H)、8.60 - 8.61 (t, J = 1.7 Hz, 1H)、8.74 - 8.63 (m, 2H)。

20

【0177】

次に、本実施例で得られた 2,6Ph-4mDBTBPm-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。

【0178】

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

【0179】

30

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 ~ 1200 とした。

【0180】

測定結果を図10に示す。図10の結果から、構造式(100)で表される本発明の一態様である複素環化合物、2,6Ph-4mDBTBPm-II(略称)は、主として m/z = 361 付近、m/z = 345 付近、m/z = 258 付近、m/z = 128 付近、および m/z = 104 付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、図10に示す結果は、2,6Ph-4mDBTBPm-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 2,6Ph-4mDBTBPm-II(略称)を同定する上で重要なデータであるといえる。

40

【0181】

なお、ピリミジン環の N 原子の隣の C-C 結合が切れ、N 原子を含むフラグメント側に電荷が残るため、m/z = 361 付近、m/z = 128 付近、m/z = 104 付近は、それぞれ構造式(100)の化合物のピリミジン環の N 原子の隣の C-C 結合が切れた状態の情報が得られていると推測されるため、有用である。また、m/z = 345 付近はジベ

50

ンゾチオフェン環とベンゼン環が2つ、 $m/z = 258$ 付近は、ジベンゾチオフェン環とベンゼン環が1つをそれぞれ含んだプロダクトイオンと推察でき、本発明の一態様である複素環化合物、2,6Ph-4mDBTBPm-II (略称)が、ジベンゾチオフェン環を含んでいることを示唆するものである。

【実施例2】

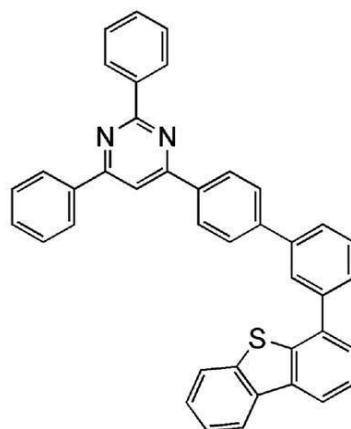
【0182】

合成例2

本実施例では、実施の形態1の構造式(101)で表される本発明の一態様である複素環化合物、4-[3'-(4-ジベンゾチエニル)-1,1'-ビフェニル-4-イル]-2,6-ジフェニルピリミジン(略称:2,6Ph-4pmDBTBPm-II)の合成方法について説明する。なお、2,6Ph-4pmDBTBPm-II(略称)の構造を以下に示す。

【0183】

【化18】



(101)

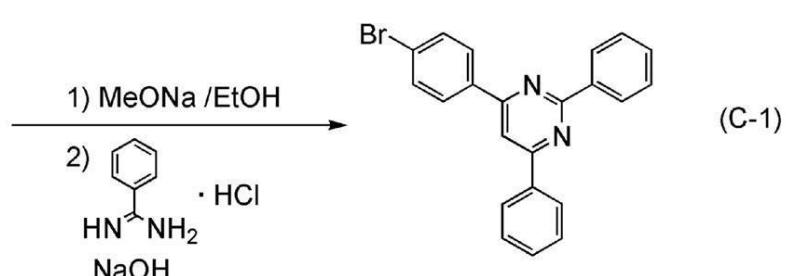
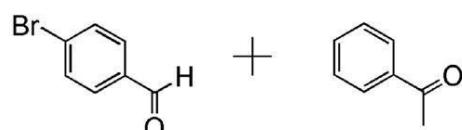
【0184】

ステップ1: 4-(4-ブロモフェニル)-2,6-ジフェニルピリミジンの合成

4-(4-ブロモフェニル)-2,6-ジフェニルピリミジンの合成スキームを(C-1)に示す。

【0185】

【化19】



10

20

30

40

50

【0186】

300 mL 三口フラスコにアセトフェノン 11 mL (94.6 mmol)、4-ブロモベンズアルデヒド 17.9 g (96.7 mmol)を入れ室素置換した。この混合物にエタノール 50 mL を加え、ナトリウムメトキシド 5.99 g (110.9 mmol)をエタノール 50 mL に懸濁させたものを滴下し、室温で 5 時間、70 で 50 分攪拌した。所定時間経過後、この混合物にベンズアミジン・塩酸塩 15.1 g (96.6 mmol) と水酸化ナトリウム 8.03 g (200 mmol) を加え、70 で 9 時間攪拌した。所定時間経過後、この混合物を吸引濾過し、得られた濾液をクロロホルムに溶かし、水で抽出を行った。得られた有機層を飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムによって乾燥した。この混合物を自然濾過し、溶媒を留去し、固体を得た。得られた固体をエタノールで洗浄することで、目的の白色固体を 8.61 g (収率 22%) で得た。 10

【0187】

また、吸引濾過後の濾液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製を行った。展開溶媒はトルエンを用いた。得られたフラクションを濃縮し、エタノールにより再結晶を行った。得られた固体をエタノールで超音波洗浄し、目的の白色固体を 1.03 g (収率 2.7%) で得た。 20

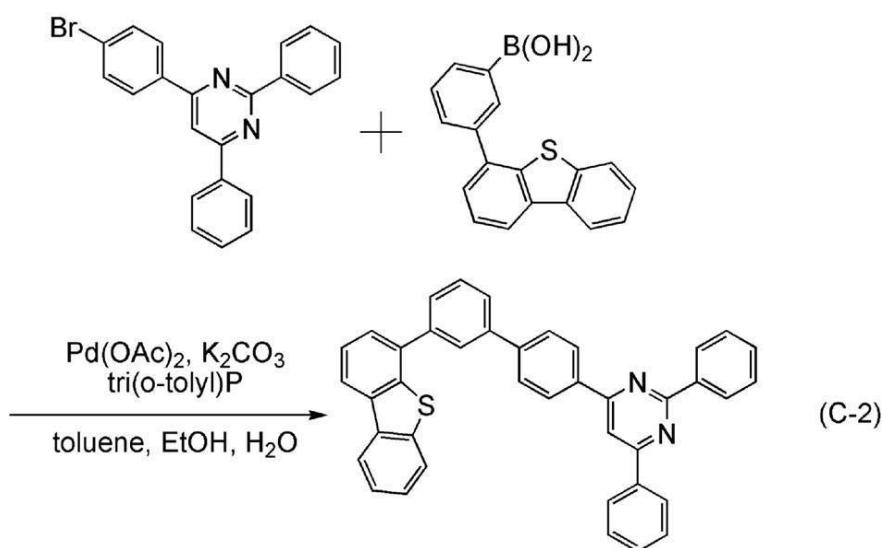
【0188】

ステップ 2 : 2, 6 Ph - 4 pmDBTBPm - II (略称) の合成

2, 6 Ph - 4 pmDBTBPm - II (略称) の合成スキームを (C-2) に示す。 20

【0189】

【化20】



【0190】

200 mL 三口フラスコに 5.03 g (13.0 mmol) の 4-(4-ブロモフェニル)-2, 6-ジフェニルピリミジンと、5.10 g (16.8 mmol) の 3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニルボロン酸と 0.15 g (0.49 mmol) の トリス(2-メチルフェニル)ホスフィンと 50 mL のトルエンと、16 mL のエタノール、16 mL の 2 M 炭酸カリウム水溶液を入れた。この混合物を減圧しながら攪拌することで脱気し、脱気後 6.4 mg (0.29 mmol) の酢酸パラジウムを加えた。この混合物を室素気流下、90 で 3 時間攪拌した。所定時間経過後、この混合物を吸引濾過し、得られた濾液に水を加え、水層をトルエンにより抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせて、水、飽和食塩水により洗浄し、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、得られた濾液を濃縮して、吸引濾過後に回収した濾液と合わせ、熱トルエンに溶かし、セライト、アルミナ、フロリジールを通して吸引濾過した。得られた混合物を濃縮 40

50

し、エタノールにより超音波洗浄後、トルエンにより再結晶を行い、目的の白色固体を収量4.66g（収率63%）で得た。

【0191】

得られた白色固体3.83gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。圧力2.7Pa、アルゴン流量5mL/minの条件で白色固体を280で加熱して行った。昇華精製後、白色固体を3.39g、88.6%の回収率で得た。

【0192】

上記合成法で得られた化合物の核磁気共鳴分光法（¹H-NMR）による分析結果を下記に示す。また、¹H-NMRチャートを図11に示す。この結果から、上述の構造式（101）で表される本発明の一態様の複素環化合物である2,6Ph-4pmDBTBPm-II（略称）が得られたことがわかった。

【0193】

¹H-NMR(CDC1₃, 500MHz): δ = 7.49 - 7.68 (m, 10H)、7.78 (dd, J = 7.5Hz, 2.0Hz, 2H)、7.86 - 7.88 (m, 1H)、7.91 (d, J = 8.5Hz, 2H)、8.09 (s, 1H)、8.11 (t, J = 1.7Hz, 1H)、8.22 (m, 2H)、8.32 (dd, J = 8.0Hz, 2.0Hz, 2H)、8.43 (d, J = 8.5Hz, 2H)、8.76 (dd, J = 8.0Hz, 2.0Hz, 2H)。

【0194】

次に、本実施例で得られた2,6Ph-4pmDBTBPm-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。

【0195】

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

【0196】

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3.0kV、サンプルコーン電圧は30V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70eVとした。なお、測定する質量範囲はm/z = 100 ~ 1200とした。

【0197】

測定結果を図12に示す。図12の結果から、構造式（101）で表される本発明の一態様である複素環化合物、2,6Ph-4pmDBTBPm-II（略称）は、主としてm/z = 361付近、m/z = 345付近、m/z = 258付近、m/z = 128付近、およびm/z = 104付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、図12に示す結果は、2,6Ph-4pmDBTBPm-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2,6Ph-4pmDBTBPm-II（略称）を同定する上で重要なデータであるといえる。

【0198】

なお、ピリミジン環のN原子の隣のC-C結合が切れ、N原子を含むフラグメント側に電荷が残るため、m/z = 361付近、m/z = 128付近、m/z = 104付近は、それぞれ構造式（100）の化合物のピリミジン環のN原子の隣のC-C結合が切れた状態の情報が得られていると推測されるため、有用である。また、m/z = 345付近はジベンゾチオフェン環とベンゼン環が2つ、m/z = 258付近は、ジベンゾチオフェン環とベンゼン環が1つをそれぞれ含んだプロダクトイオンと推察でき、本発明の一態様である複素環化合物、2,6Ph-4pmDBTBPm-II（略称）が、ジベンゾチオフェン環を含んでいることを示唆するものである。

10

20

30

40

50

【実施例3】

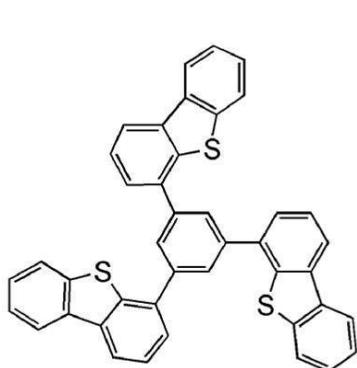
【0199】

本実施例では、本発明の一態様である複素環化合物、4-[3'-(4-ジベンゾチエニル)-1,1'-ビフェニル-3-イル]-2,6-ジフェニルピリミジン(略称:2,6Ph-4mDBTBPm-II)(構造式(100))を発光層の一部および電子輸送層に用いた発光素子1、および4-[3'-(4-ジベンゾチエニル)-1,1'-ビフェニル-4-イル]-2,6-ジフェニルピリミジン(略称:2,6Ph-4pmDBTBPm-II)(構造式(101))を発光層の一部および電子輸送層に用いた発光素子2について図13を用いて説明する。なお、本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

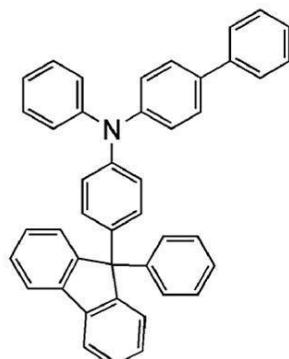
10

【0200】

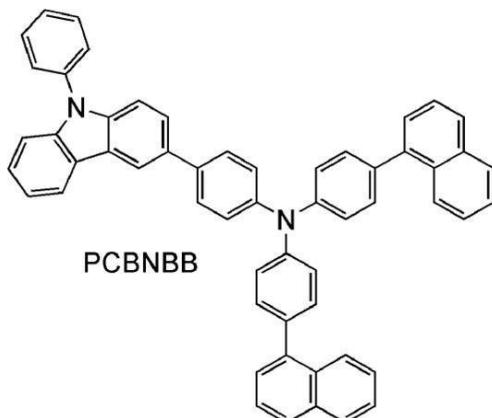
【化21】



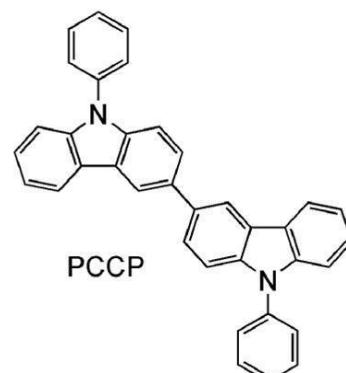
DBT3P-II



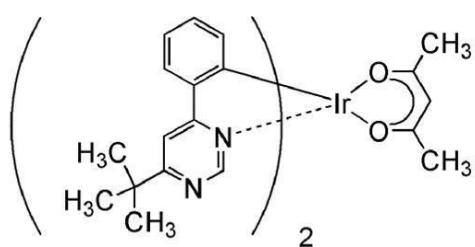
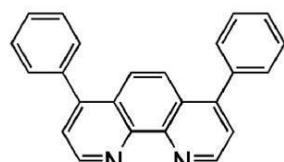
BPAFLP



PCBNBB



PCCP

[Ir(tBuppm)₂(acac)]₂

BPhen

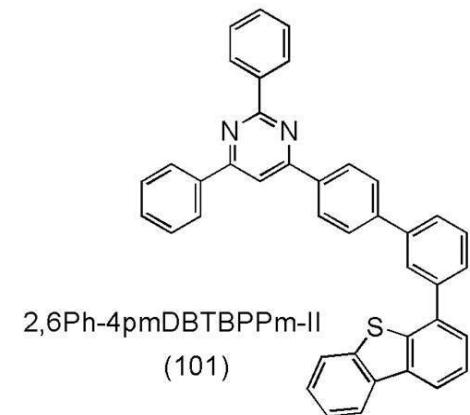
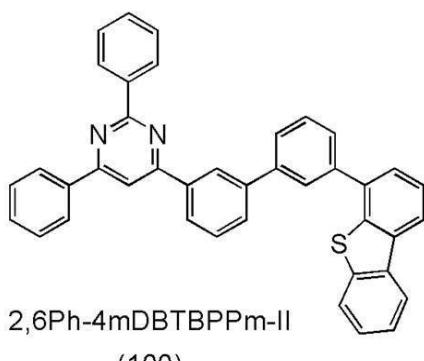
20

30

40

【0201】

【化22】



10

20

30

40

50

【0202】

発光素子1および発光素子2の作製

まず、ガラス製の基板1100上に酸化珪素を含むインジウム錫酸化物(ITSO)をスパッタリング法により成膜し、陽極として機能する第1の電極1101を形成した。なお、その膜厚は110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

【0203】

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。

【0204】

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1100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。

【0205】

次に、第1の電極1101が形成された面が下方となるように、基板1100を真空蒸着装置内に設けられたホルダーに固定した。本実施例では、真空蒸着法により、EL層1102を構成する正孔注入層1111、正孔輸送層1112、発光層1113、電子輸送層1114、電子注入層1115が順次形成される場合について説明する。

【0206】

真空装置内を 10^{-4} Paに減圧した後、1,3,5-トリ(ジベンゾチオフェン-4-イル)ベンゼン(略称:DBT3P-II)と酸化モリブデン(VI)とを、DBT3P-II(略称)：酸化モリブデン=4:2(質量比)となるように共蒸着することにより、第1の電極1101上に正孔注入層1111を形成した。膜厚は40nmとした。なお、共蒸着とは、異なる複数の物質をそれぞれ異なる蒸発源から同時に蒸発させる蒸着法である。

【0207】

次に、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3,3'-ビス(9-フェニル-9H-カルバゾール)(略称:PCCP)とを、BPAFLP(略称)：PCCP(略称)=1:1(質量比)となるように共蒸着することにより、正孔輸送層1112を形成した。膜厚は20nmとした。

【0208】

次に、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。

【0209】

発光素子1の場合は、はじめに2,6Ph-4mDBTBPPm-II(略称)、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: P C B N B B)、(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(II)(略称: [Ir(tBu₂ppm)₂(acac)])を、2,6Ph-4mDBTBPm-II(略称): P C B N B B(略称): [Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)=0.5:0.5:0.05(質量比)となるように共蒸着により20nmの膜厚で形成した後、さらに2,6Ph-4pmDBTBPm-II(略称): P C B N B B(略称): [Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)=0.8:0.2:0.05(質量比)となるように20nmの膜厚で形成し、積層構造を有する40nmの発光層1113を形成した。

【0210】

発光素子2の場合は、はじめに2,6Ph-4pmDBTBPm-II(略称): P C B N B B(略称)、[Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)を、2,6Ph-4pmDBTBPm-II(略称): P C B N B B(略称): [Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)=0.5:0.5:0.05(質量比)となるように共蒸着により20nmの膜厚で形成した後、さらに2,6Ph-4pmDBTBPm-II(略称): P C B N B B(略称): [Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)=0.8:0.2:0.05(質量比)となるように20nmの膜厚で形成し、積層構造を有する40nmの発光層1113を形成した。

【0211】

なお、本実施例で説明する発光素子1および発光素子2は、いずれも発光層において、エキサイプレックスを形成することができる構成である。

【0212】

次に、発光素子1の場合は、発光層1113上に2,6Ph-4mDBTBPm-II(略称)を蒸着し、膜厚を10nmとした後、バソフェナントロリン(略称: Bphen)を20nm蒸着することにより、積層構造を有する電子輸送層1114を形成した。また、発光素子2の場合は、発光層1113上に2,6Ph-4pmDBTBPm-II(略称)を蒸着し、膜厚を10nmとした後、バソフェナントロリン(略称: Bphen)を20nm蒸着することにより、積層構造を有する電子輸送層1114を形成した。

【0213】

さらに、電子輸送層1114上にフッ化リチウムを1nm蒸着することにより、電子注入層1115を形成した。

【0214】

最後に、電子注入層1115上にアルミニウムを200nmの膜厚となるように蒸着し、陰極となる第2の電極1103形成し、発光素子1および発光素子2を得た。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。

【0215】

以上により得られた発光素子1および発光素子2の素子構造を表1に示す。

【0216】

【表1】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層		電子輸送層		電子注入層	第2の電極
発光素子1	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoO _x (4:2 40nm)	BPAFLP :PCCP (1:1 20nm)	*	**	2,6Ph-4mDBTBPPm-II (10nm)	Bphen (20nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
発光素子2	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoO _x (4:2 40nm)	BPAFLP :PCCP (1:1 20nm)	***	****	2,6Ph-4pmDBTBPPm-II (10nm)	Bphen (20nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)

10

* 2,6Ph-4mDBTBPPm-II:PCBNBB:[Ir(tBuppm)₂(acac)] (0.5:0.5:0.05 20nm)** 2,6Ph-4mDBTBPPm-II:PCBNBB:[Ir(tBuppm)₂(acac)] (0.8:0.2:0.05 20nm)*** 2,6Ph-4pmDBTBPPm-II:PCBNBB:[Ir(tBuppm)₂(acac)] (0.5:0.5:0.05 20nm)**** 2,6Ph-4pmDBTBPPm-II:PCBNBB:[Ir(tBuppm)₂(acac)] (0.8:0.2:0.05 20nm)

【0217】

また、作製した発光素子1および発光素子2は、大気に曝されないように窒素雰囲気のグローブボックス内において封止した（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）。

20

【0218】

発光素子1および発光素子2の動作特性

作製した発光素子1および発光素子2の動作特性について測定した。なお、測定は室温(25)に保たれた雰囲気)で行った。

【0219】

まず、発光素子1および発光素子2の電流密度-輝度特性を図14、電圧-輝度特性を図15、輝度-電流効率特性を図16、電圧-電流特性を図17にそれぞれ示す。

【0220】

図16より、本発明の一態様の複素環化合物を発光層、および電子輸送層に用いた発光素子1および発光素子2は、低消費電力で高効率な素子であることがわかった。

30

【0221】

また、1000cd/m²付近における発光素子1および発光素子2の主な初期特性値を以下の表2に示す。

【0222】

【表2】

	電圧(V)	電流(mA)	電流密度(mA/cm ²)	色度(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(%)
発光素子1	3.1	0.067	1.7	(0.42,0.56)	1100	66	67	18
発光素子2	2.9	0.064	1.6	(0.41,0.57)	750	46	50	13

40

【0223】

上記、表2の結果からも本実施例で作製した発光素子1および発光素子2は、高輝度であり、高い電流効率を示していることが分かる。

【0224】

また、発光素子1および発光素子2についての信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図18に示す。図18において、縦軸は初期輝度を100%とした時の規格化輝度(%)

50

)を示し、横軸は素子の駆動時間 (h) を示す。なお、信頼性試験は、初期輝度を 5 0 0 0 c d / m² に設定し、電流密度一定の条件で発光素子 1 および発光素子 2 を駆動させた。その結果、発光素子 1 および発光素子 2 の 1 0 0 時間後の輝度は、初期輝度のおよそ 8 3 % を保っていた。

【 0 2 2 5 】

したがって、信頼性試験の結果から、発光素子 1 および発光素子 2 は、高い信頼性を示すことがわかった。また、本発明の一態様である複素環化合物を発光素子に用いることにより、長寿命の発光素子が得られることがわかった。

【 実施例 4 】

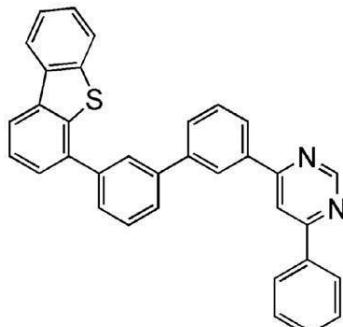
【 0 2 2 6 】

合成例 3

本実施例では、実施形態 1 の構造式 (1 1 2) で表される本発明の一態様である複素環化合物、4 - [3 ' - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) - 1 , 1 ' - ピフェニル - 3 - イル] - 6 - フェニルピリミジン (略称 : 6 Ph - 4 m D B T B P P m - I I) の合成方法について説明する。なお、6 Ph - 4 m D B T B P P m - I I (略称) の構造を以下に示す。

【 0 2 2 7 】

【 化 2 3 】



6Ph-4mDBTBPPm-II

(112)

20

30

【 0 2 2 8 】

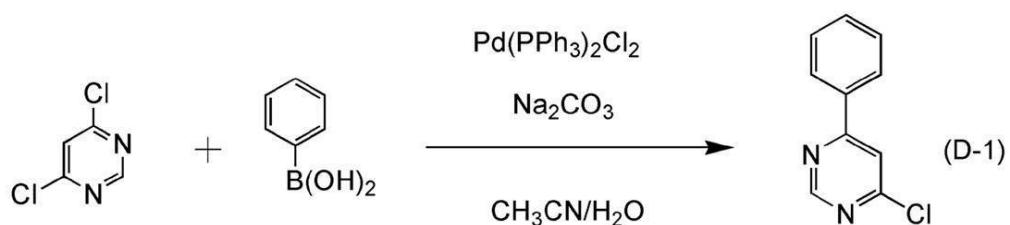
ステップ 1 : 4 - クロロ - 6 - フェニルピリミジンの合成

4 , 6 - ジクロロピリミジン 5 . 1 g 、フェニルボロン酸 8 . 2 g 、炭酸ナトリウム 7 . 1 6 g 、アセトニトリル 2 0 m L 、水 2 0 m L を、還流管を付けた 1 0 0 m L 丸底フラスコに入れ、容器内を窒素置換した。この混合物にビス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (I I) ジクロリド 0 . 3 4 7 g を加え、マイクロ波 (2 . 4 5 G H z 1 0 0 W) を 1 時間照射した。さらに、フェニルボロン酸 2 . 0 7 g 、炭酸ナトリウム 1 . 7 9 g を加えて、マイクロ波 (2 . 4 5 G H z 1 0 0 W) を 1 時間照射した。得られた混合物からジクロロメタンにて有機層を抽出した。得られた有機層を水と飽和食塩水にて洗浄し、硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。この混合物を自然ろ過した。ろ液の溶媒を留去して、得られた残渣を、ジクロロメタンを展開溶媒としたシリカカラムクロマトグラフィーにより精製することにより、目的物を得た (白色粉末、 3 7 %) 。なお、マイクロ波の照射はマイクロ波合成装置 (C E M 社製 D i s c o v e r) を用いた。また、ステップ 1 の合成スキームを下記 (D - 1) に示す。

【 0 2 2 9 】

40

【化24】



10

【0230】

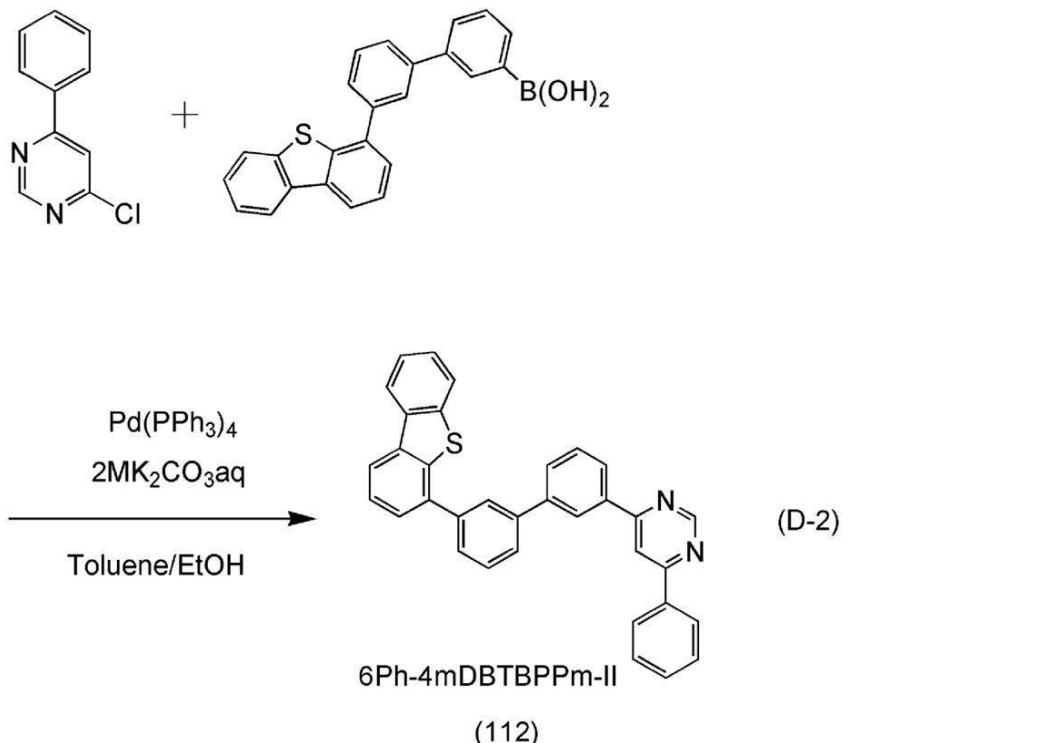
ステップ2：4-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)-1,1'-ビフェニル-3-イル]-6-フェニルピリミジン（略称：[6Ph-4mDBTBPm-II]）の合成

次に、上記ステップ1で得た4-クロロ-6-フェニルピリミジン1.0g、3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)-3-ビフェニルボロン酸2.0g、2M炭酸カリウム水溶液5.3mL、トルエン24mL、エタノール3.0mLを、還流管を付けた100mL三口フラスコに入れ、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)（略称：Pd(PPh₃)₄）61mgを加え、80℃で7時間加熱し、反応させた。得られた混合物からトルエンにて有機層を抽出し、得られた有機層を水、飽和食塩水にて洗浄し、無水硫酸マグネシウムを加え、自然ろ過した。この溶液の溶媒を留去した後、得られた残渣を熱トルエンに溶かし、セライト、アルミナ、セライト、フロリジール、セライトの順で積層したろ過補助剤を通して熱ろ過した。溶媒を留去し、得られた固体をトルエンにて再結晶することにより白色固体を1.9g、収率71%で得た。ステップ2の合成スキームを下記式(D-2)に示す。

【0231】

20

【化25】



【0232】

得られた固体2.4 gをトライインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製条件は、圧力3.0 Pa、アルゴンガス流量15 mL/min、加熱温度265 °Cにて行った。昇華精製後、目的物の無色透明結晶を1.9 g、79%の回収率で得た。

【0233】

なお、上記ステップ2で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法(¹H-NMR)による分析結果を下記に示す。また、¹H-NMRチャートを図19に示す。これにより、上述の構造式(112)で表される本発明の一態様の複素環化合物である6Ph-4mDBTBPPm-II(略称)が得られたことがわかった。

【0234】

¹H-NMR. (CDCl₃): 7.45-7.50 (dm, 2H), 7.52-7.54 (m, 3H), 7.56-7.61 (m, 2H), 7.63-7.67 (m, 2H), 7.76-7.77 (ds, 1H), 7.78 (ds, 1H), 7.82-7.83 (dd, 1H), 7.85-7.87 (dd, 1H), 8.08-8.09 (ts, 1H), 8.14-8.22 (dm, 6H), 8.45-8.46 (ts, 1H), 9.34-9.35 (ds, 1H).

【0235】

また、6Ph-4mDBTBPPm-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。

【0236】

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。

【0237】

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

10

20

30

40

50

、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50eV及び70eVとした。なお、測定する質量範囲はm/z=100乃至1200とした。

【0238】

測定結果を図20および図21に示す。図20はコリジョンエネルギー50eVの時の、図21はコリジョンエネルギー70eVの時のそれぞれ結果を表すグラフである。図20および図21の結果から、構造式（112）で表される本発明の一態様である複素環化合物、6Ph-4mDBTBPPm-II（略称）は、主としてm/z=447付近、m/z=361付近、m/z=345付近、m/z=258付近、m/z=128付近、およびm/z=104付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、図20および図21に示す結果は、6Ph-4mDBTBPPm-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6Ph-4mDBTBPPm-II（略称）を同定するまでの重要なデータであるといえる。

【0239】

なお、ピリミジン環のN原子の隣のC-C結合が切れ、N原子を含むフラグメント側に電荷が残るため、m/z=361付近、m/z=128付近、m/z=104付近は、それぞれ構造式（112）の化合物のピリミジン環のN原子の隣のC-C結合が切れた状態の情報が得られていると推測されるため、有用である。また、m/z=345付近はジベンゾチオフェン環とベンゼン環が2つ、m/z=258付近は、ジベンゾチオフェン環とベンゼン環が1つをそれぞれ含んだプロダクトイオンと推察でき、本発明の一態様である複素環化合物、6Ph-4mDBTBPPm-II（略称）が、ジベンゾチオフェン環を含んでいることを示唆するものである。

【実施例5】

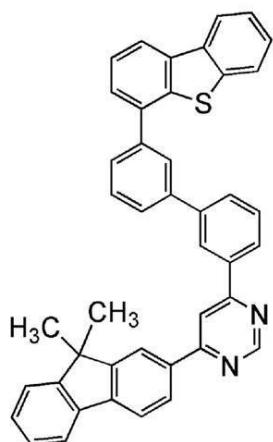
【0240】

合成例4

本実施例では、実施形態1の構造式（121）で表される本発明の一態様である4-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)-1,1'-ビフェニル-3-イル]-6-(9,9-ジメチルフルオレン-2-イル)ピリミジン（略称：6FL-4mDBTBPPm）の合成方法について説明する。なお、6FL-4mDBTBPPm（略称）の構造を以下に示す。

【0241】

【化26】



6FL-4mDBTBPPm

(121)

【0242】

10

20

30

40

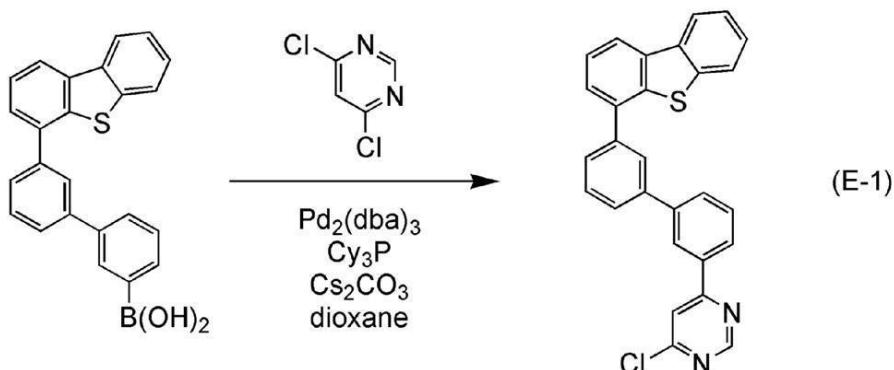
50

ステップ1；4-クロロ-6-[3-(3'-ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル]ピリミジンの合成

まず、4,6-ジクロロピリミジン0.20g(1.3mmol)、3'-ジベンゾチオフェン-4-イル)-3-ビフェニルボロン酸0.51g(1.3mmol)、炭酸セシウム0.85g(2.6mmol)、トリシクロヘキシルホスフィン(Cy₃P)0.2mL(0.83mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)(Pd₂(dba)₃)18mg(0.020mmol)、ジオキサン10mLを100mL丸底フラスコに入れ、15分間アルゴンバーピングを行ない、マイクロ波(85、150W)を2時間照射した。得られた溶液の水層をジクロロメタンで抽出した。得られた抽出溶液と有機層を合わせて水、飽和食塩水で洗浄し、有機層に無水硫酸マグネシウムを加えて乾燥させた。この混合物を自然ろ過し、ろ液を濃縮して固体を得た。この固体を、ジクロロメタンを展開溶媒としたフラッシュカラムクロマトグラフィーにて精製した。さらに、トルエンを展開溶媒としたシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより再度精製を行った。得られたフラクションを濃縮して得られた固体を、トルエンにて再結晶して4-クロロ-6-[3-(3'-ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル]ピリミジンを得た(白色固体、収率44%)。ステップ1の合成スキームを下記(E-1)に示す。

【0243】

【化27】



20

【0244】

ステップ2；4-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)(1,1'-ビフェニル-3-イル)]-6-(9,9-ジメチルフルオレン-2-イル)ピリミジン(略称：6FL-4mDBTBPm)の合成

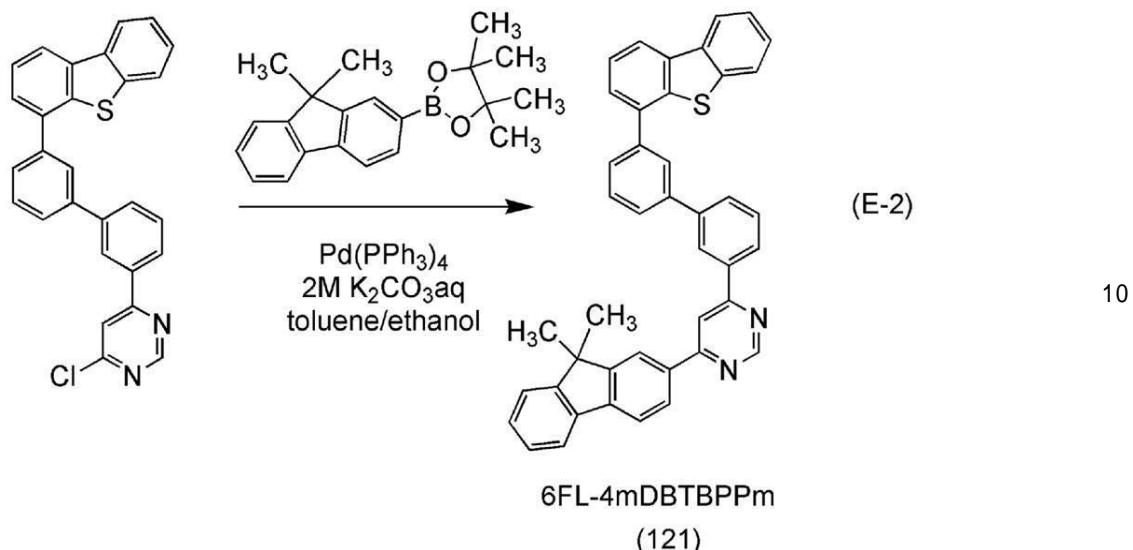
次に、4-クロロ-6-[3-(3'-ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル]ピリミジン1.0g(2.6mmol)、9,9-ジメチルフルオレン-2-ビナコールボロン酸1.0g(3.2mmol)、トルエン15mL、エタノール3mL、2M炭酸カリウム水溶液2.6mLを200mL反応容器に入れ、容器内を窒素置換した。この混合物にテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(Pd(PPh₃)₄)30mg(0.02mmol)を加え、80で8時間加熱攪拌した。得られた反応溶液の水層をトルエンで抽出し、得られた抽出溶液と有機層を合わせて水、飽和食塩水で洗浄した。有機層に無水硫酸マグネシウムを加え乾燥させ、得られた混合物を自然ろ過し、ろ液を得た。このろ液を濃縮して得た固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。展開溶媒には、トルエンを用いた。得られたフラクションを濃縮して固体を得た。この固体をエタノールにて再結晶して、6FL-4mDBTBPmを得た(白色固体、収率51%)。ステップ2の合成スキームを下記(E-2)に示す。

【0245】

30

40

【化28】



【0246】

得られた固体 0.81 g をトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製条件は、圧力 2.6 Pa、アルゴンガス流量 10 mL/min、加熱温度 270 にて行った。昇華精製後、目的物の淡黄色透明結晶を 0.47 g 58% の回収率で得た。 20

【0247】

なお、上記ステップ 2 で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法 (¹ H - NMR) による分析結果を下記に示す。また、 ¹ H - NMR チャートを図 22 に示す。このことから、本合成例 4 において、上述の構造式 (121) で表される本発明の一態様の複素環化合物である 6FL-4mDBTBPPm (略称) が得られたことがわかった。

【0248】

¹ H - NMR . (CDCl₃) : 1.58 (s , 6 H) , 7.36 - 7.39 (m , 2 H) , 7.43 - 7.50 (m , 3 H) , 7.57 - 7.61 (m , 2 H) , 7.77 - 7.80 (m , m) , 7.85 (dd , 2 H) , 7.88 (d , 1 H) , 8.11 (t , 1 H) , 8.14 (dd , 1 H) , 8.17 - 8.23 (m , 4 H) , 8.29 (d , 1 H) , 8.49 (t , 1 H) , 9.37 (d , 1 H) . 30

【0249】

また、 6FL-4mDBTBPPm (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。

【0250】

LC/MS 分析は、ウォーターズ社製 Acuity UPLC およびウォーターズ社製 Xevo G2 ToF MS を用いて行った。 40

【0251】

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 乃至 1200 とした。

【0252】

測定結果を図 23 に示す。図 23 の結果から、構造式 (121) で表される本発明の一

10

20

40

50

態様である複素環化合物、6 F L - 4 m D B T B P P m (略称) は、主として $m/z = 59$ 付近、 $m/z = 54$ 付近、 $m/z = 36$ 付近、 $m/z = 34$ 付近、 $m/z = 20$ 付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、図 23 に示す結果は、6 F L - 4 m D B T B P P m (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 F L - 4 m D B T B P P m (略称) を同定する上で重要なデータであるといえる。

【0253】

なお、ピリミジン環の N 原子の隣の C - C 結合が切れ、N 原子を含むフラグメント側に電荷が残るため、 $m/z = 36$ 付近は、構造式 (121) の化合物のピリミジン環の N 原子の隣の C - C 結合が切れた状態の情報が得られていると推測されるため、有用である。また、 $m/z = 34$ 付近はジベンゾチオフェン環とベンゼン環が 2 つを含んだプロダクトイオンと推察でき、本発明の一態様である複素環化合物、6 F L - 4 m D B T B P P m (略称) が、ジベンゾチオフェン環を含んでいることを示唆するものである。

【実施例 6】

【0254】

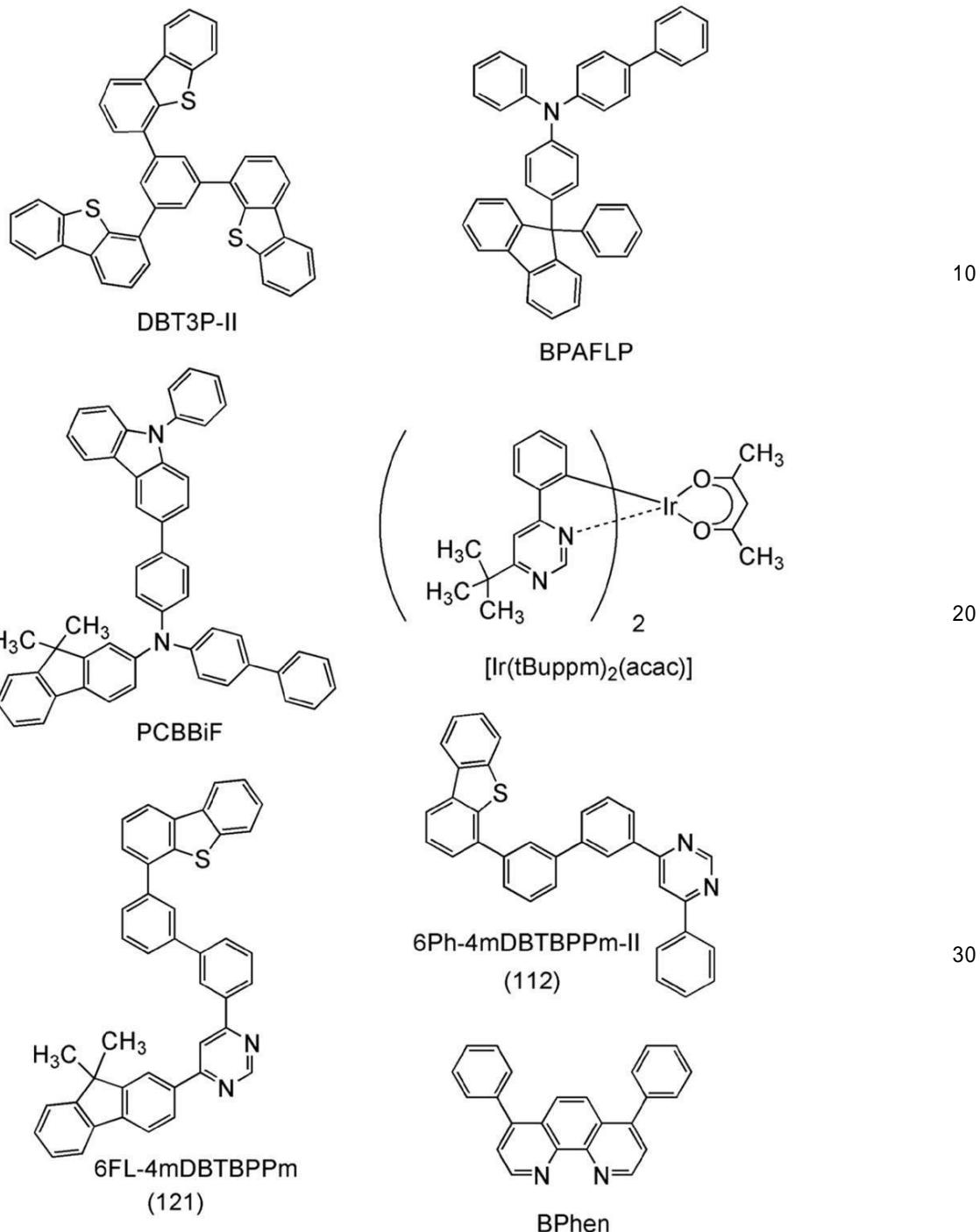
本実施例では、本発明の一態様である複素環化合物、4 - [3' - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) - 1, 1' - ビフェニル - 3 - イル] - 6 - フェニルピリミジン (略称: 6 P h - 4 m D B T B P P m - I I) (構造式 (112)) を発光層の一部および電子輸送層に用いた発光素子 3、および 4 - [3' - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) - 1, 1' - ビフェニル - 3 - イル] - 6 - (9, 9 - ジメチルフルオレン - 2 - イル) ピリミジン (略称: 6 F L - 4 m D B T B P P m) (構造式 (121)) を発光層の一部および電子輸送層に用いた発光素子 4 について実施例 3 で用いた図 13 を用いて同様に説明する。なお、本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

【0255】

10

20

【化29】



【0256】

発光素子3および発光素子4の作製

まず、ガラス製の基板1100上に酸化珪素を含むインジウム錫酸化物(ITSO)をスパッタリング法により成膜し、陽極として機能する第1の電極1101を形成した。なお、その膜厚は110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

【0257】

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。

【0258】

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1100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1

100を30分程度放冷した。

【0259】

次に、第1の電極1101が形成された面が下方となるように、基板1100を真空蒸着装置内に設けられたホルダーに固定した。本実施例では、真空蒸着法により、EL層1102を構成する正孔注入層1111、正孔輸送層1112、発光層1113、電子輸送層1114、電子注入層1115が順次形成される場合について説明する。

【0260】

真空装置内を 10^{-4} Paに減圧した後、1,3,5-トリ(ジベンゾチオフェン-4-イル)ベンゼン(略称:DBT3P-II)と酸化モリブデン(VI)とを、DBT3P-II(略称):酸化モリブデン=4:2(質量比)となるように共蒸着することにより、第1の電極1101上に正孔注入層1111を形成した。膜厚は20nmとした。なお、共蒸着とは、異なる複数の物質をそれぞれ異なる蒸発源から同時に蒸発させる蒸着法である。

【0261】

次に、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)を蒸着することにより、正孔輸送層1112を形成した。膜厚は20nmとした。

【0262】

次に、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。

【0263】

発光素子3の場合は、はじめに6Ph-4mDBTBPm-II(略称)、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミン(略称:PCB BiF)、(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(tBu₂ppm)₂(acac)])を、6Ph-4mDBTBPm-II(略称):PCB BiF(略称):[Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)=0.7:0.3:0.05(質量比)となるように共蒸着により20nmの膜厚で形成した後、さらに6Ph-4mDBTBPm-II(略称):PCB BiF(略称):[Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)=0.8:0.2:0.05(質量比)となるように20nmの膜厚で形成し、積層構造を有する40nmの発光層1113を形成した。

【0264】

発光素子4の場合は、はじめに6FL-4mDBtBPPm(略称)、PCB BiF(略称)、[Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)を、6FL-4mDBTBPm(略称):PCB BiF(略称):[Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)=0.7:0.3:0.05(質量比)となるように共蒸着により20nmの膜厚で形成した後、さらに6FL-4mDBTBPm(略称):PCB BiF(略称):[Ir(tBu₂ppm)₂(acac)](略称)=0.8:0.2:0.05(質量比)となるように20nmの膜厚で形成し、積層構造を有する40nmの発光層1113を形成した。

【0265】

なお、本実施例で説明する発光素子3および発光素子4は、いずれも発光層において、エキサイブレックスを形成することができる構成である。

【0266】

次に、発光素子3の場合は、発光層1113上に6Ph-4mDBTBPm-II(略称)を蒸着し、膜厚を15nmとした後、バソフェナントロリン(略称:Bphen)を15nm蒸着することにより、積層構造を有する電子輸送層1114を形成した。また、発光素子4の場合は、発光層1113上に6FL-4mDBTBPm(略称)を蒸着し、膜厚を15nmとした後、バソフェナントロリン(略称:Bphen)を10nm蒸着することにより、積層構造を有する電子輸送層1114を形成した。

10

20

30

40

50

【0267】

さらに、電子輸送層1114上にフッ化リチウムを1nm蒸着することにより、電子注入層1115を形成した。

【0268】

最後に、電子注入層1115上にアルミニウムを200nmの膜厚となるように蒸着し、陰極となる第2の電極1103形成し、発光素子3および発光素子4を得た。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。

【0269】

以上により得られた発光素子3および発光素子4の素子構造を表3に示す。

【0270】

【表3】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層		電子輸送層		電子注入層	第2の電極
発光素子3	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoO _x (4:2 40nm)	BPAFLP (20nm)	*	**	6Ph-4mDBTBPPm-II (15nm)	Bphen (15nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
発光素子4	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoO _x (4:2 40nm)	BPAFLP (20nm)	***	****	6FL-4mDBTBPPm (15nm)	Bphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)

* 6Ph-4mDBTBPPm-II:PCBBI_F:[Ir(tBu₄ppm)₂(acac)] (0.7:0.3:0.05 20nm)

** 6Ph-4mDBTBPPm-II:PCBBI_F:[Ir(tBu₄ppm)₂(acac)] (0.8:0.2:0.05 20nm)

*** 6FL-4mDBTBPPm:PCBBI_F:[Ir(tBu₄ppm)₂(acac)] (0.7:0.3:0.05 20nm)

**** 6FL-4mDBTBPPm:PCBBI_F:[Ir(tBu₄ppm)₂(acac)] (0.8:0.2:0.05 20nm)

【0271】

また、作製した発光素子3および発光素子4は、大気に曝されないように窒素雰囲気のグローブボックス内において封止した（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）。

【0272】

発光素子3および発光素子4の動作特性

作製した発光素子3および発光素子4の動作特性について測定した。なお、測定は室温(25に保たれた雰囲気)で行った。

【0273】

まず、発光素子3および発光素子4の電流密度-輝度特性を図24、電圧-輝度特性を図25、輝度-電流効率特性を図26、電圧-電流特性を図27にそれぞれ示す。

【0274】

図26より、本発明の一態様の複素環化合物を発光層、および電子輸送層に用いた発光素子3および発光素子4は、低消費電力で高効率な素子であることがわかった。

【0275】

また、1000cd/m²付近における発光素子3および発光素子4の主な初期特性値を以下の表4に示す。

【0276】

10

20

30

40

【表4】

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度(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 (%)
発光素子 3	2.8	0.032	0.81	(0.41,0.58)	740	92	100	24
発光素子 4	2.8	0.043	1.1	(0.39,0.60)	1200	110	120	28

10

【0277】

上記、表4の結果からも本実施例で作製した発光素子3および発光素子4は、高輝度であり、高い電流効率を示していることが分かる。

【0278】

また、発光素子4についての信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図28に示す。図28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。なお、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を駆動させた。その結果、発光素子4の100時間後の輝度は、初期輝度のおよそ83%を保っていた。

【0279】

したがって、信頼性試験の結果から、発光素子4は、高い信頼性を示すことがわかった。また、本発明の一態様である複素環化合物を発光素子に用いることにより、長寿命の発光素子が得られることがわかった。

【符号の説明】

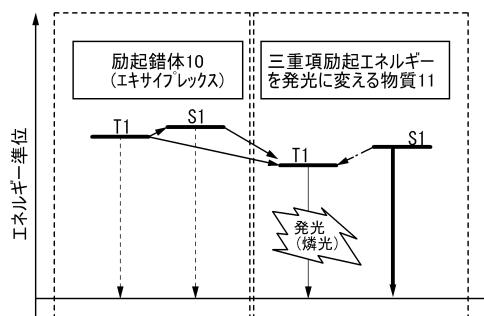
【0280】

10	励起錯体	
11	三重項励起エネルギーを発光に変える発光性物質	
101	陽極	
102	陰極	
103	EL層	30
104	発光層	
105	第1の有機化合物	
106	第2の有機化合物	
107	発光性物質	
201	第1の電極(陽極)	
202	第2の電極(陰極)	
203	EL層	
204	正孔注入層	
205	正孔輸送層	
206	発光層	40
207	電子輸送層	
208	電子注入層	
209	第1の有機化合物	
210	第2の有機化合物	
211	発光性物質	
301	第1の電極	
302(1)	第1のEL層	
302(2)	第2のEL層	
302(n-1)	第(n-1)のEL層	
302(n)	第nのEL層	50

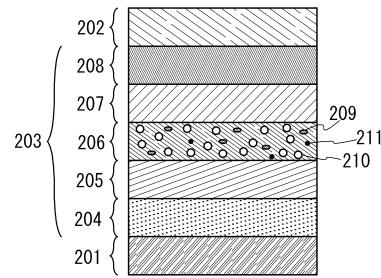
3 0 4	第 2 の電極	
3 0 5	電荷発生層	
3 0 5 (1)	第 1 の電荷発生層	
3 0 5 (2)	第 2 の電荷発生層	
3 0 5 (n - 2)	第 (n - 2) の電荷発生層	
3 0 5 (n - 1)	第 (n - 1) の電荷発生層	
5 0 1	素子基板	
5 0 2	画素部	
5 0 3	駆動回路部 (ソース線駆動回路)	10
5 0 4 a, 5 0 4 b	駆動回路部 (ゲート線駆動回路)	10
5 0 5	シール材	
5 0 6	封止基板	
5 0 7	配線	
5 0 8	F P C (フレキシブルプリントサーキット)	
5 0 9	n チャネル型 T F T	
5 1 0	p チャネル型 T F T	
5 1 1	スイッチング用 T F T	
5 1 2	電流制御用 T F T	
5 1 3	第 1 の電極 (陽極)	
5 1 4	絶縁物	20
5 1 5	E L 層	
5 1 6	第 2 の電極 (陰極)	
5 1 7	発光素子	
5 1 8	空間	
1 1 0 0	基板	
1 1 0 1	第 1 の電極	
1 1 0 2	E L 層	
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	30
1 1 1 3	発光層	
1 1 1 4	電子輸送層	
1 1 1 5	電子注入層	
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	40
7 2 0 1	本体	
7 2 0 2	筐体	
7 2 0 3	表示部	
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	50

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	
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	10
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	
7 4 0 5	スピーカ	
7 4 0 6	マイク	
8 0 0 1	照明装置	
8 0 0 2	照明装置	
8 0 0 3	照明装置	
8 0 0 4	照明装置	
9 0 3 3	留め具	20
9 0 3 4	表示モード切り替えスイッチ	
9 0 3 5	電源スイッチ	
9 0 3 6	省電力モード切り替えスイッチ	
9 0 3 8	操作スイッチ	
9 6 3 0	筐体	
9 6 3 1	表示部	
9 6 3 1 a	表示部	
9 6 3 1 b	表示部	
9 6 3 2 a	タッチパネルの領域	
9 6 3 2 b	タッチパネルの領域	30
9 6 3 3	太陽電池	
9 6 3 4	充放電制御回路	
9 6 3 5	バッテリー	
9 6 3 6	D C D C コンバータ	
9 6 3 7	操作キー	
9 6 3 8	コンバータ	
9 6 3 9	ボタン	

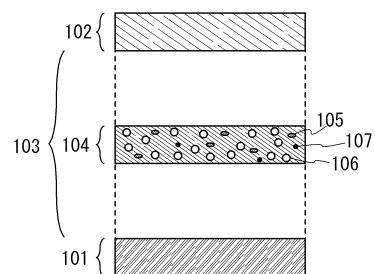
【図1】



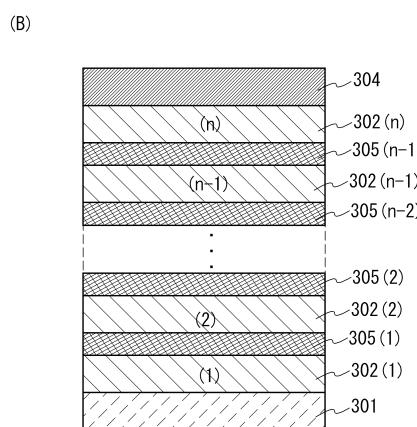
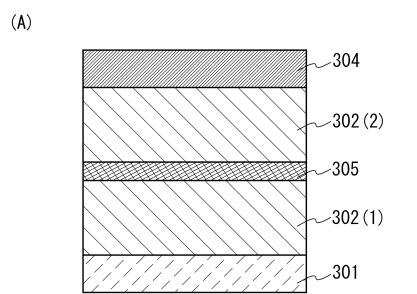
【図3】



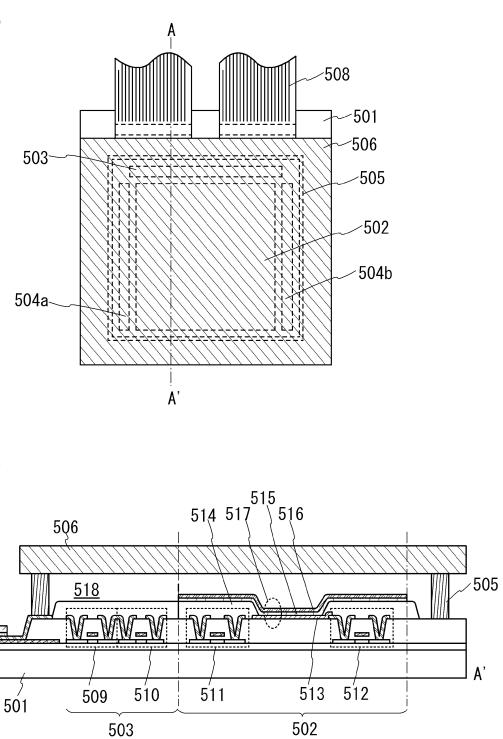
【図2】



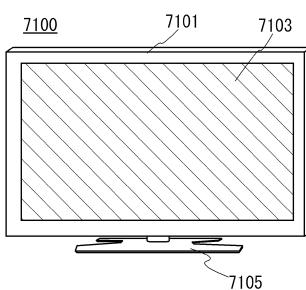
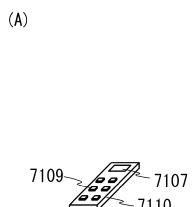
【図4】



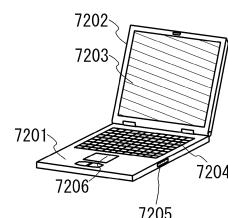
【図5】



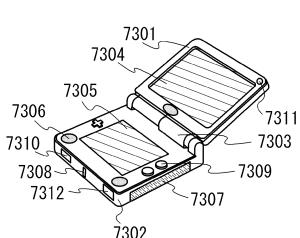
【図6】



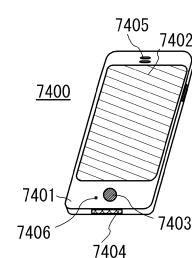
(B)



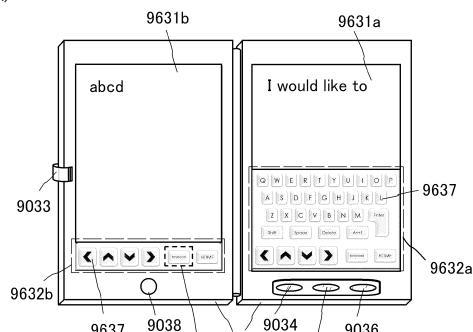
(C)



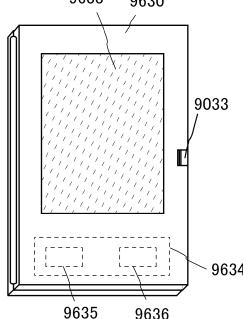
(D)



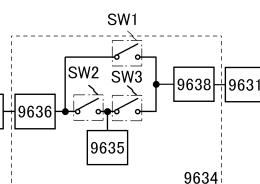
〔 図 7 〕



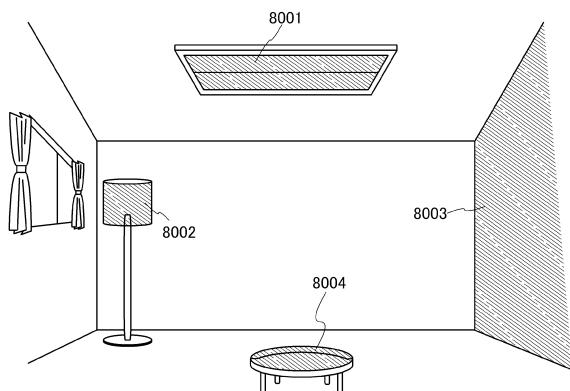
(B)



(6)

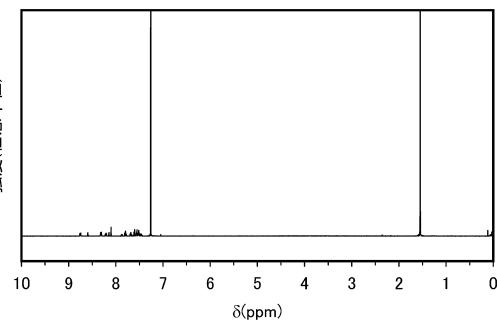


【 四 8 】

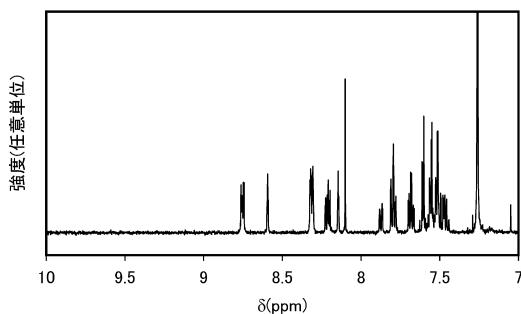


【 四 9 】

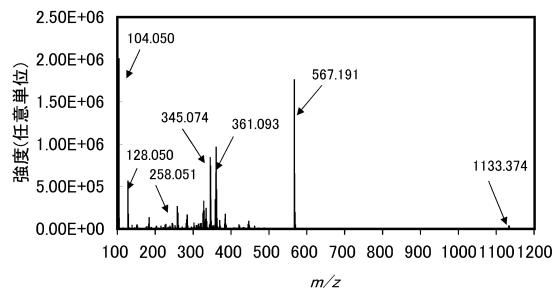
(A)



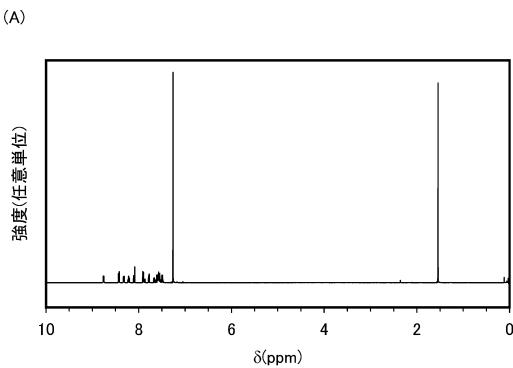
(B)



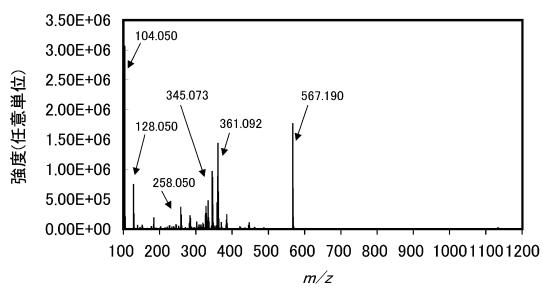
【図10】



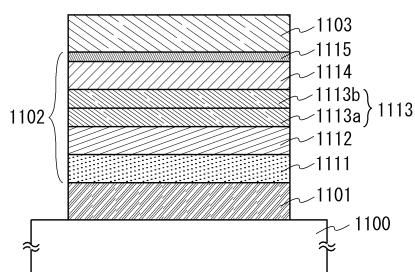
【図11】



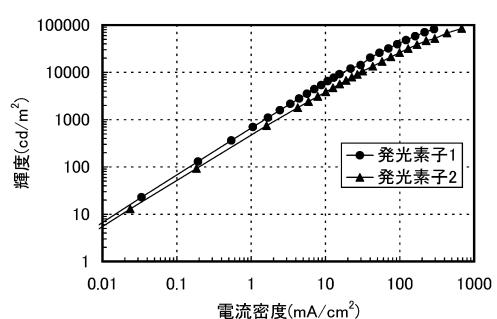
【図12】



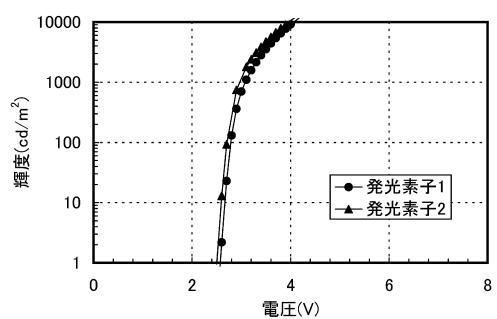
【図13】



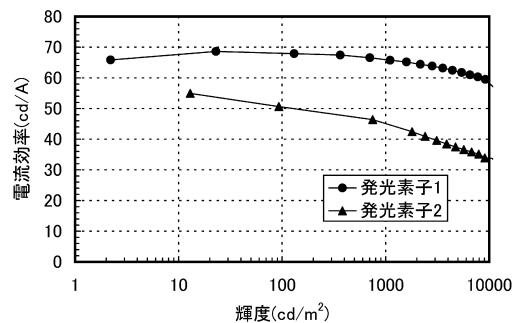
【図14】



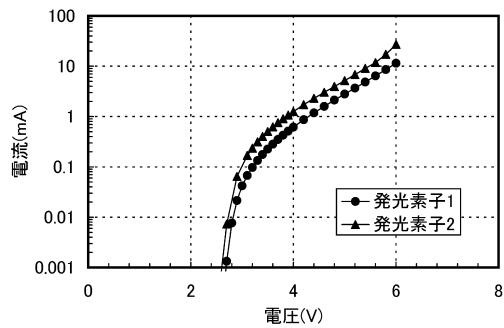
【図15】



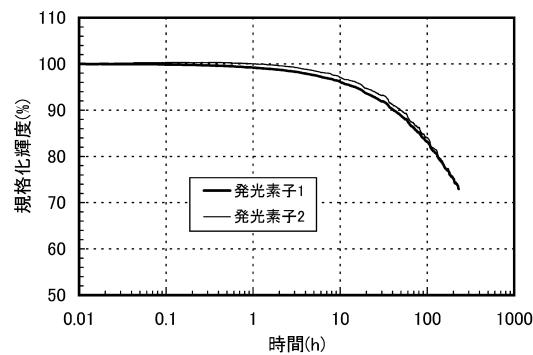
【図16】



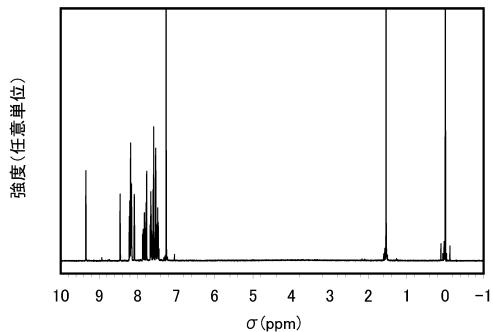
【図17】



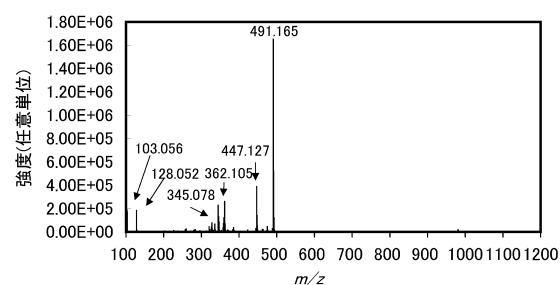
【図18】



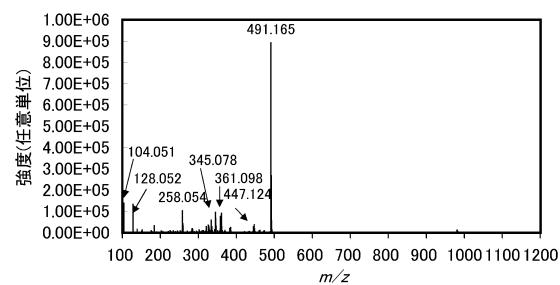
【図19】



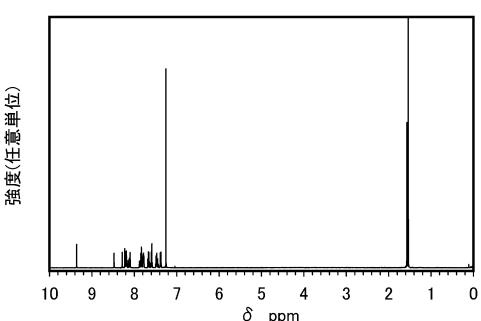
【図20】



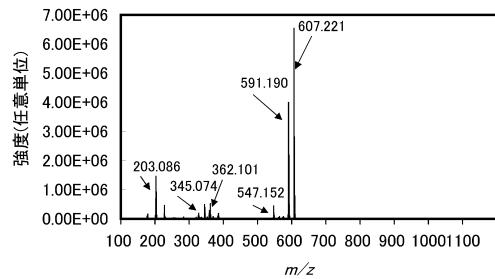
【図21】



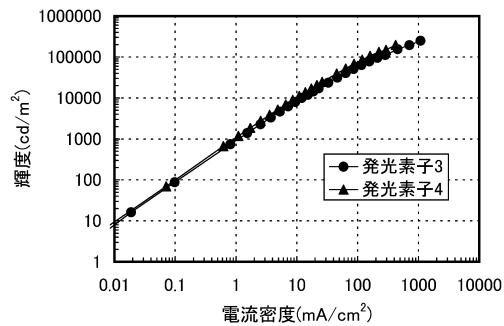
【図22】



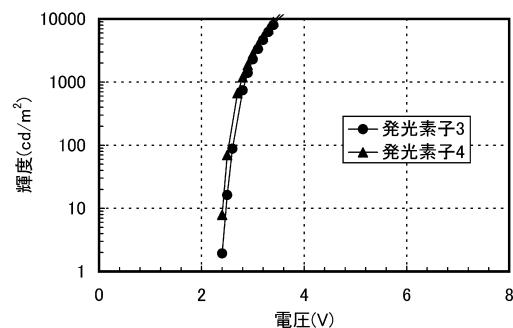
【図23】



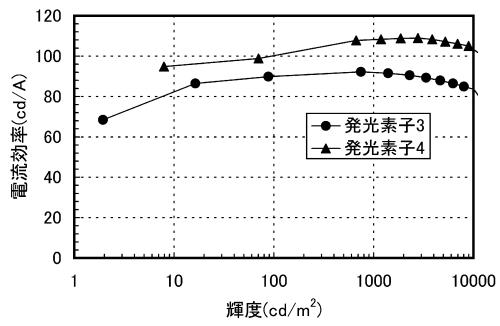
【図24】



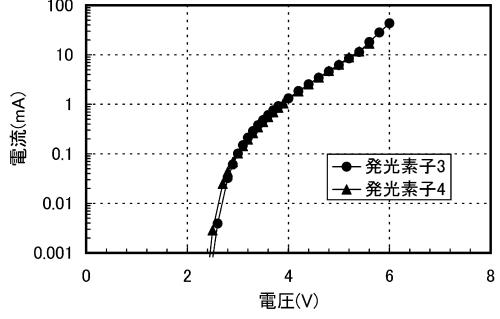
【図25】



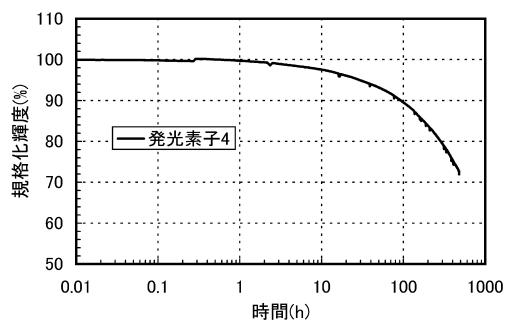
【図26】



【図27】



【図28】



フロントページの続き

(72)発明者 濑尾 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
(72)発明者 金元 美樹
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
(72)発明者 中川 朋香
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 岩井 好子

(56)参考文献 国際公開第2012/070234 (WO, A1)
国際公開第2013/077352 (WO, A1)
特開2013-055086 (JP, A)
特開2011-044365 (JP, A)
特開2011-071474 (JP, A)
特開平07-085972 (JP, A)
特表2013-509670 (JP, A)
特表2014-503979 (JP, A)
吉田巧、他3名、エキサイプレックス状態の高い逆交換交差確率の検証、第71回応用物理学
会学術講演会 講演予稿集 2010年秋、2010年、17p-ZK-8

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

H01L 51/50
C07D 409/10
C09K 11/06
Caplus / REGISTRY (STN)