

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2008-239613
(P2008-239613A)

(43) 公開日 平成20年10月9日(2008.10.9)

(51) Int.Cl.

C07D 241/42
C09K 11/06
H01L 51/50

F 1

C07D 241/42
C09K 11/06
H05B 33/14

テーマコード(参考)

3K107

B

審査請求 未請求 請求項の数 15 O L (全 101 頁)

(21) 出願番号 特願2008-43765 (P2008-43765)
 (22) 出願日 平成20年2月26日 (2008.2.26)
 (31) 優先権主張番号 特願2007-50244 (P2007-50244)
 (32) 優先日 平成19年2月28日 (2007.2.28)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(71) 出願人 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 野村 洋子
 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 川上 祥子
 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 大澤 信晴
 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 野村 亮二
 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

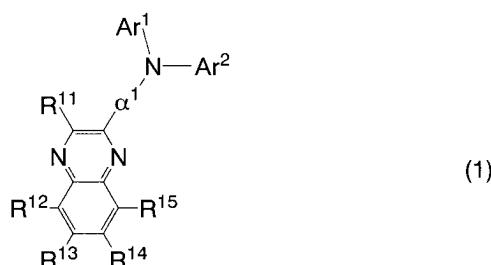
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】キノキサリン誘導体、およびキノキサリン誘導体を用いた発光素子、発光装置、電子機器

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】新規なバイポーラ性の有機化合物を提供することを目的とする。また、キャリアバランスに優れた発光素子を提供することを目的とする。また、駆動電圧が低く、消費電力の小さい発光素子および発光装置を提供することを目的とする。また、消費電力の小さい電子機器を提供する。

【解決手段】一般式(1)で表されるキノキサリン誘導体。



10

(式中、Ar¹～Ar²は、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基などのいずれかを表し、Ar¹～Ar²は、結合していても良い。Ar¹は、炭素数6～25のアリーレン基を表す。R¹¹～R¹⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または炭素数6～25の置換もしくは無置換のアリール基のいずれかを表す。)

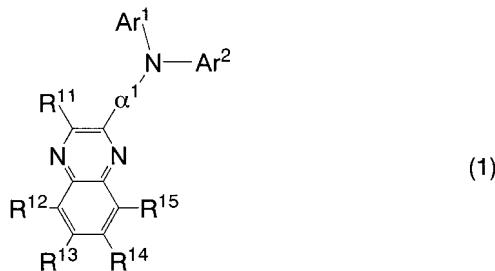
20

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一般式(1)で表されるキノキサリン誘導体。

【化 1】



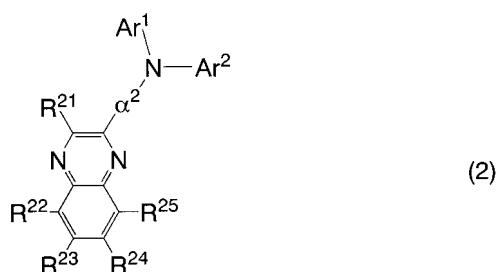
10

(式中、Ar¹～Ar²は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、Ar¹～Ar²は、結合していても良い。¹は、炭素数6～25のアリーレン基を表す。R¹～R⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または炭素数6～25の置換もしくは無置換のアリール基のいずれかを表す。)

【請求項 2】

一般式(2)で表されるキノキサリン誘導体。

【化 2】



20

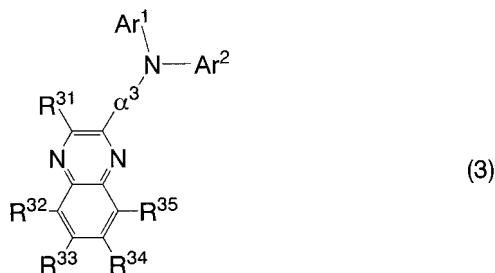
(式中、Ar¹～Ar²は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、Ar¹～Ar²は、結合していても良い。²は、炭素数6～25の縮合環でないアリーレン基を表す。R²～R⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または炭素数6～25の置換もしくは無置換の縮合環でないアリール基のいずれかを表す。)

30

【請求項 3】

一般式(3)で表されるキノキサリン誘導体。

【化 3】



40

(式中、Ar¹～Ar²は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、Ar¹～Ar²は、結合していても良い。³は、フェニレン基、またはビフェニル-ジイル基、またはフルオレン-ジイル基のいずれかを表

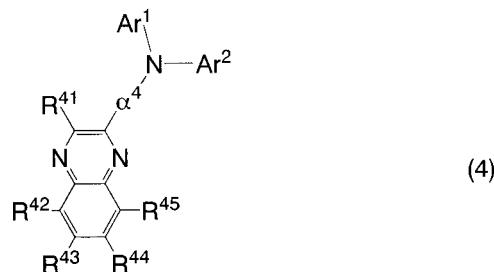
50

す。 $R^{3\ 1} \sim R^{3\ 5}$ は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のフルオレン基のいずれかを表す。)

【請求項4】

一般式(4)で表されるキノキサリン誘導体。

【化4】



(式中、 $Ar^1 \sim Ar^2$ は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、 $Ar^1 \sim Ar^2$ は、結合していても良い。 Ar^4 は、フェニレン基、またはビフェニル-ジイル基のいずれかを表す。 $R^{4\ 1} \sim R^{4\ 5}$ は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

10

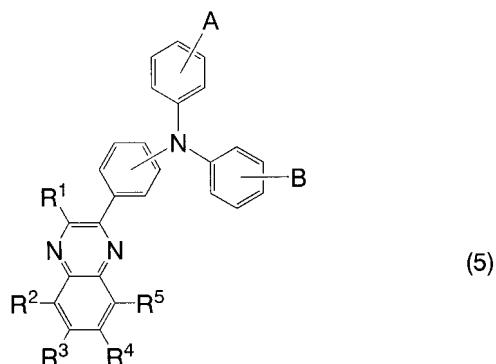
20

30

【請求項5】

一般式(5)で表されるキノキサリン誘導体。

【化5】



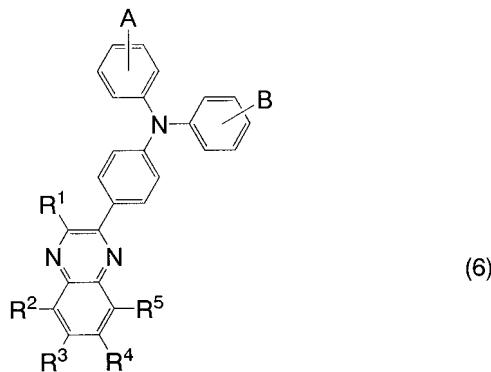
(式中、AおよびBは、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素またはフェニル基を表し、 $R^1 \sim R^5$ は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

【請求項6】

一般式(6)で表されるキノキサリン誘導体。

40

【化6】



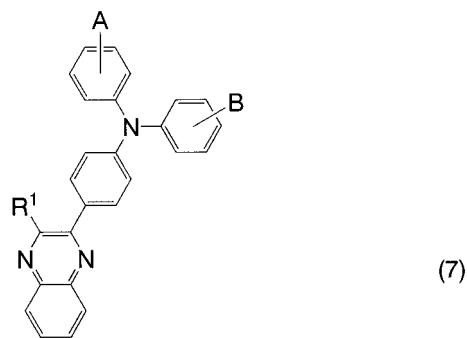
10

(式中、AおよびBは、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素またはフェニル基を表し、R¹～R⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

【請求項7】

一般式(7)で表されるキノキサリン誘導体。

【化7】



20

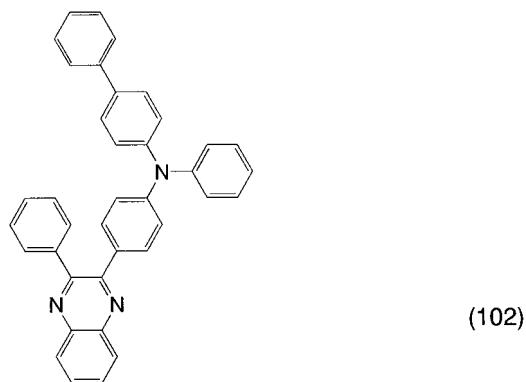
(式中、AおよびBは、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素またはフェニル基を表し、R¹は、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

30

【請求項8】

構造式(102)で表されるキノキサリン誘導体。

【化8】

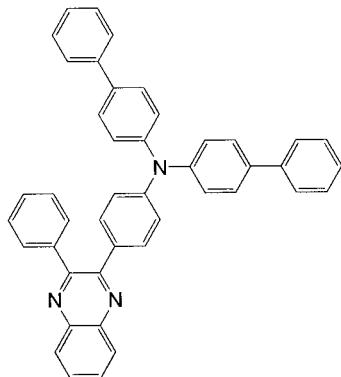


40

【請求項9】

構造式(105)で表されるキノキサリン誘導体。

【化9】



(105)

10

【請求項10】

一対の電極間に、請求項1乃至請求項9のいずれか一項に記載のキノキサリン誘導体を有することを特徴とする発光素子。

【請求項11】

一対の電極間に発光層を有し、

前記発光層は請求項1乃至請求項9のいずれか一項に記載のキノキサリン誘導体を有することを特徴とする発光素子。

【請求項12】

一対の電極間に発光層を有し、

前記発光層は請求項1乃至請求項9のいずれか一項に記載のキノキサリン誘導体と蛍光発光性物質を有することを特徴とする発光素子。

【請求項13】

一対の電極間に発光層を有し、前記発光層は請求項1乃至請求項9のいずれか一項に記載のキノキサリン誘導体と燐光発光性物質を有することを特徴とする発光素子。

【請求項14】

請求項10乃至請求項13のいずれか一項に記載の発光素子と、前記発光素子の発光を制御する制御手段とを有する発光装置。

【請求項15】

30

表示部を有し、

前記表示部は、請求項10乃至請求項13のいずれか一項に記載の発光素子と前記発光素子の発光を制御する制御手段とを備えたことを特徴とする電子機器。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、キノキサリン誘導体、およびキノキサリン誘導体を用いた発光素子、発光装置、電子機器に関する。

【背景技術】

【0002】

有機化合物は無機化合物に比べて、多様な構造をとることが可能であり、分子設計により様々な機能を有する材料を合成できる可能性がある。これらの利点から、近年、機能性有機材料を用いたフォトエレクトロニクスやエレクトロニクスに注目が集まっている。

【0003】

例えば、有機化合物を機能性有機材料として用いたエレクトロニクスデバイスの例として、太陽電池や発光素子、有機トランジスタ等が挙げられる。これらは有機化合物の電気物性および光物性を利用したデバイスであり、特に発光素子はめざましい発展を見せていく。

【0004】

発光素子の発光機構は、一対の電極間に発光層を挟んで電圧を印加することにより、陰

40

50

極から注入された電子および陽極から注入された正孔が発光層の発光中心で再結合して分子励起子を形成し、その分子励起子が基底状態に戻る際にエネルギーを放出して発光するといわれている。励起状態には一重項励起と三重項励起が知られ、発光はどちらの励起状態を経ても可能であると考えられている。

【0005】

このような発光素子に関しては、その素子特性を向上させる上で、材料に依存した問題が多く、これらを克服するために素子構造の改良や材料開発等が行われている。

【0006】

発光素子の最も基本的な構造としては、正孔輸送性の有機化合物からなる正孔輸送層と、電子輸送性の有機化合物からなる電子輸送性発光層を積層させた合計約100nm程度の薄膜を電極で挟んだ構造が知られている（例えば、非特許文献1参照）。

10

【0007】

非特許文献1に記載されている発光素子に電圧を印加すると、電子輸送性の有機化合物からの発光を得ることができる。

【0008】

また、非特許文献1に記載されている発光素子は、正孔の輸送は正孔輸送層が行い、電子の輸送および発光は電子輸送層が行うという、機能分離が行われている。しかし、積層した層の界面では、様々な相互作用（例えば、エキサイプレックスの形成等）が生じ、その結果、発光スペクトルの変化や発光効率の低下が生じる場合がある。

20

【0009】

界面での相互作用に起因した発光スペクトルの変化や発光効率の低下を改善するため、さらに機能分離した発光素子が考えられた。例えば、正孔輸送層と電子輸送層との間に発光層を挟む構造の発光素子が提案されている（例えば、非特許文献2参照）。

【0010】

非特許文献2に記載されているような発光素子において、界面で生じる相互作用をさらに抑制するには、電子輸送性および正孔輸送性の両方を有するバイポーラ性の有機化合物を用いて発光層を形成することが好ましい。

【0011】

しかしながら、有機化合物の多くは正孔輸送性または電子輸送性に偏ったモノポーラ性の材料である。

30

【0012】

したがって、電子輸送性および正孔輸送性の両方を有するバイポーラ性の有機化合物の開発が求められている。

【0013】

特許文献1では、バイポーラ性のキノキサリン誘導体について記載されている。しかしながら、特性は未だ十分ではなく、より多様なバイポーラ性の有機化合物の開発が求められている。

【非特許文献1】C. W. タン、外1名、アプライド フィジクス レターズ、vol. 51、No. 12、913 - 915 (1987)

【非特許文献2】チハヤ アダチ、外3名、ジャパニーズ ジャーナル オブ アプライド フィジクス、vol. 27、No. 2、L269 - L271 (1988)

40

【特許文献1】国際公開第2004/094389号パンフレット

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0014】

上記問題を鑑み、本発明は、新規なバイポーラ性の有機化合物を提供することを目的とする。

【0015】

また、本発明のバイポーラ性の有機化合物を用いることで、キャリアバランスに優れた発光素子を提供することを目的とする。また、本発明のバイポーラ性の有機化合物を用い

50

ることで、駆動電圧が低く、消費電力の小さい発光素子および発光装置を提供することを目的とする。

【0016】

また、本発明のバイポーラ性の有機化合物を用いることで、消費電力の小さい電子機器を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

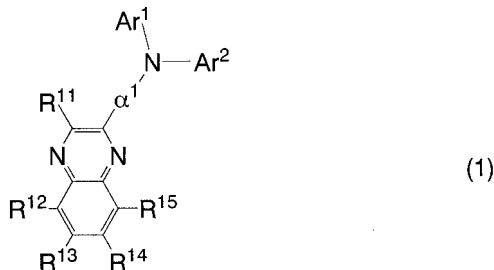
【0017】

本発明の一は、下記一般式(1)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0018】

【化1】

10



【0019】

(式中、Ar¹～Ar²は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、Ar¹～Ar²は、結合していても良い。Ar¹は、炭素数6～25のアリーレン基を表す。R¹¹～R¹⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または炭素数6～25の置換もしくは無置換のアリール基のいずれかを表す。)

20

【0020】

上記キノキサリン誘導体は、正孔輸送性のアミン骨格と、電子輸送性のキノキサリン骨格とを同一分子内に有するため、バイポーラ性である。また、上記キノキサリン誘導体はバイポーラ性なので、発光素子において、発光性物質を分散させる材料として好適に用いることができる。また、上記キノキサリン誘導体は、キャリアを輸送することができるため、発光素子において、キャリア輸送層として用いることができる。

30

【0021】

また、上記のキノキサリン誘導体は、Ar¹およびAr²が縮合環ではないため、高い一重項励起エネルギーを有する。よって、発光素子において、発光性物質を分散させる材料、または、発光性物質を含む層に接する層に好適に用いることができる。つまり、発光性物質と接するように、本発明のキノキサリン誘導体を用いることができる。特に、上記キノキサリン誘導体は、高い一重項励起エネルギーを有するため、蛍光を発光する物質(以下、蛍光発光性物質という)と接するように用いることができる。本発明のキノキサリン誘導体は、高い一重項励起エネルギーを有するため、比較的短波長の蛍光発光性物質に接するように用いた場合でも、蛍光発光性物質からの発光を消光してしまうことを防ぐことができる。

40

【0022】

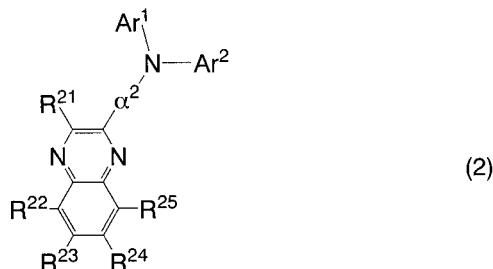
また、上記のキノキサリン誘導体において、三重項励起エネルギーの点から、Ar¹およびR¹¹～R¹⁵は、縮合環でないことが好ましい。つまり、上記一般式(1)で表されるキノキサリン誘導体において、Ar¹およびR¹¹～R¹⁵が縮合環でないキノキサリン誘導体であることが好ましい。

【0023】

よって、本発明の一は、下記一般式(2)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0024】

【化2】



【0025】

(式中、 Ar^1 ～ Ar^2 は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、 Ar^1 ～ Ar^2 は、結合していても良い。 R^{21} ～ R^{25} は、炭素数6～25の縮合環でないアリーレン基を表す。 R^{21} ～ R^{25} は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または炭素数6～25の置換もしくは無置換の縮合環でないアリール基のいずれかを表す。)

10

【0026】

一般式(2)において、 R^2 および R^{21} ～ R^{25} が縮合環でないことにより、高い三重項励起エネルギーを有するキノキサリン誘導体を得ることができる。よって、発光素子において、熒光を発光する物質(以下、熒光発光性物質という)を分散させる材料、または、熒光発光性物質を含む層に接する層に好適に用いることができる。つまり、熒光発光性物質と接するように、本発明のキノキサリン誘導体を用いることができる。本発明のキノキサリン誘導体は、高い三重項励起エネルギーを有するため、比較的短波長の熒光発光性物質に接するように用いた場合でも、熒光発光性物質からの発光を消光してしまうことを防ぐことができる。

20

【0027】

縮合環でないアリール基として具体的には、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のフルオレン基などが挙げられる。また、縮合環でないアリーレン基として具体的にはフェニレン基、またはビフェニル-ジイル基、またはフルオレン-ジイル基などが挙げられる。

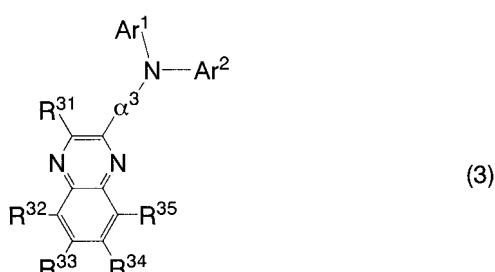
30

【0028】

よって、本発明の一は、下記一般式(3)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0029】

【化3】



40

【0030】

(式中、 Ar^1 ～ Ar^2 は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、 Ar^1 ～ Ar^2 は、結合していても良い。 R^{31} ～ R^{35} は、フェニレン基、またはビフェニル-ジイル基、またはフルオレン-ジイル基のいずれかを表す。 R^{31} ～ R^{35} は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のフルオレン基のいずれかを表す。)

50

【0031】

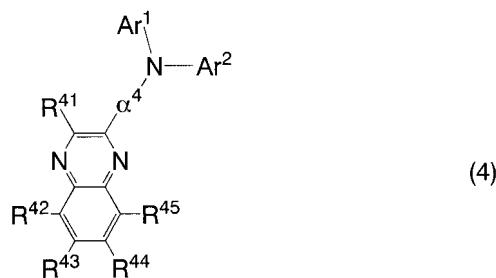
一般式(3)において、合成の点から、 R^3 は、フェニレン基、またはビフェニル-ジイル基であることが好ましい。また、合成の点から、 $R^{31} \sim R^{35}$ は、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基であることが好ましい。

【0032】

よって、本発明の一は、下記一般式(4)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0033】

【化4】



10

【0034】

(式中、 $Ar^1 \sim Ar^2$ は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、 $Ar^1 \sim Ar^2$ は、結合していても良い。 α^4 は、フェニレン基、またはビフェニル-ジイル基のいずれかを表す。 $R^{41} \sim R^{45}$ は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

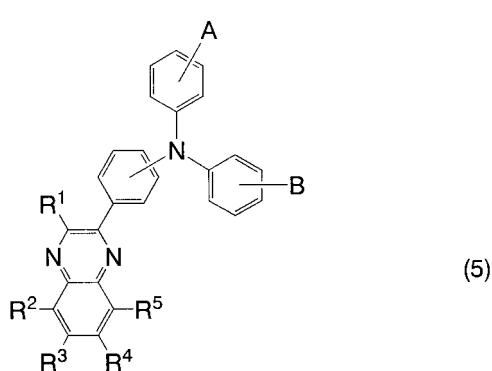
20

【0035】

また、本発明の一は、一般式(5)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0036】

【化5】



30

【0037】

(式中、AおよびBは、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素またはフェニル基を表し、 $R^1 \sim R^5$ は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

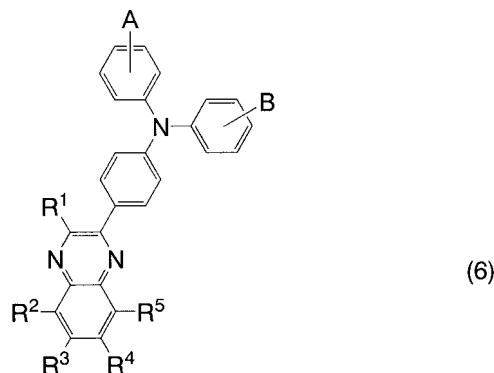
40

【0038】

また、本発明の一は、一般式(6)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0039】

【化6】



10

【0040】

(式中、AおよびBは、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素またはフェニル基を表し、R¹～R⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

【0041】

また、上記一般式(6)において、合成の点から、R²～R⁵は、水素原子であることが好ましい。

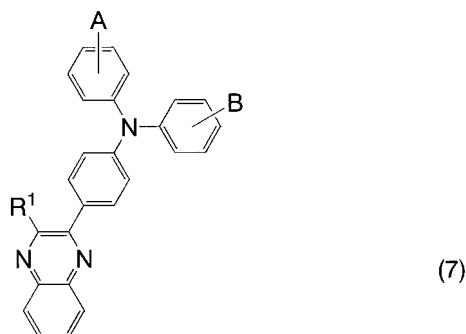
20

【0042】

よって、本発明の一は、一般式(7)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0043】

【化7】



30

【0044】

(式中、AおよびBは、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素またはフェニル基を表し、R¹は、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

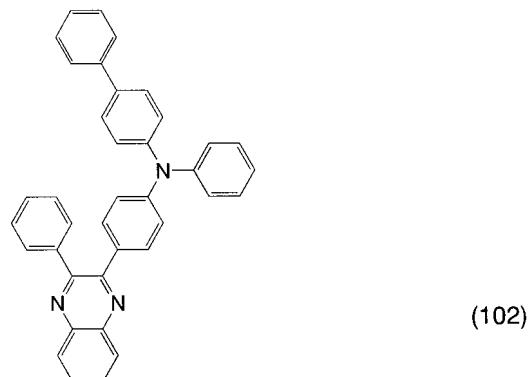
【0045】

また、本発明の一は、構造式(102)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0046】

40

【化8】



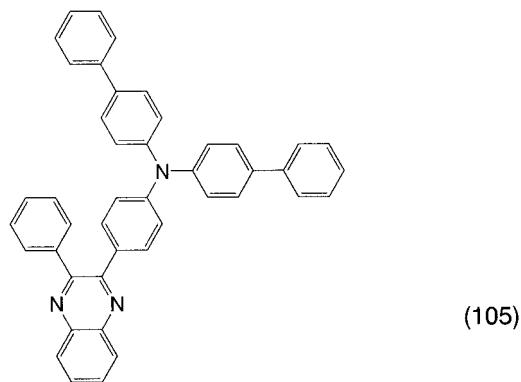
10

【0047】

また、本発明の一は、構造式(105)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0048】

【化9】



20

【0049】

また、本発明の一は、上記キノキサリン誘導体を用いた発光素子である。具体的には、一対の電極間に上述したキノキサリン誘導体を有することを特徴とする発光素子である。

30

【0050】

また、本発明の一は、一対の電極間に発光層を有し、発光層は上述したキノキサリン誘導体を有することを特徴とする発光素子である。

【0051】

また、本発明の一は、一対の電極間に発光層を有し、発光層は上述したキノキサリン誘導体と蛍光発光性物質を有することを特徴とする発光素子である。

【0052】

また、本発明の一は、一対の電極間に発光層を有し、発光層は上述したキノキサリン誘導体と燐光発光性物質を有することを特徴とする発光素子である。

【0053】

また、本発明の発光装置は、一対の電極間にEL層を有し、EL層に、上記のキノキサリン誘導体を含む発光素子と、発光素子の発光を制御する制御手段とを有することを特徴とする。なお、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）を含む。また、パネルにコネクター、例えばFPC(Flexible printed circuit)もしくはTAB(Tape Automated Bonding)テープもしくはTCP(Tape Carrier Package)が取り付けられたモジュール、TABテープや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。

40

【0054】

50

また、本発明の発光素子を表示部に用いた電子機器も本発明の範疇に含めるものとする。したがって、本発明の電子機器は、表示部を有し、表示部は、上述した発光素子と発光素子の発光を制御する制御手段とを備えたことを特徴とする。

【発明の効果】

【0055】

本発明のキノキサリン誘導体は、バイポーラ性であり、電子輸送性および正孔輸送性の双方に優れている。また、本発明のキノキサリン誘導体は、電気化学的な酸化や還元に対して安定である。

【0056】

さらに、本発明のキノキサリン誘導体はバイポーラ性を有しているため、発光素子に用いることで、駆動電圧が低く、消費電力の小さい発光素子および発光装置を得ることができる。

【0057】

また、本発明のキノキサリン誘導体を用いることで、消費電力の小さい電子機器を得ることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0058】

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。

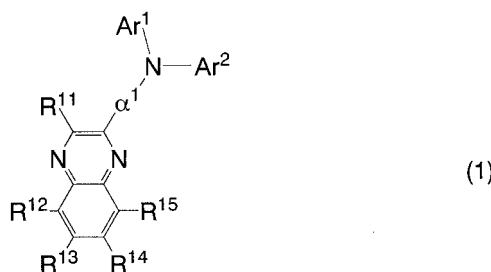
【0059】

(実施の形態1)

本発明のキノキサリン誘導体は、下記一般式(1)で表される。

【0060】

【化10】



【0061】

(式中、Ar¹～Ar²は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、Ar¹～Ar²は、結合していても良い。Ar¹は、炭素数6～25のアリーレン基を表す。R¹¹～R¹⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または炭素数6～25の置換もしくは無置換のアリール基のいずれかを表す。)

【0062】

置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基としては、具体的には、構造式(11-1)～(11-13)に示す置換基が挙げられる。また、構造式(11-1)～(11-13)に示す置換基に、さらに炭素数1～4のアルキル基が置換されていてもよい。炭素数1～4のアルキル基としては、メチル基、エチル基、イソプロピル基、n-プロピル基、イソブチル基、sec-ブチル基、n-ブチル基、tert-ブチル基などが挙げられる。

【0063】

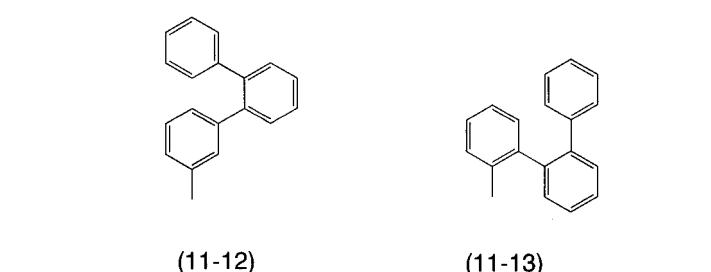
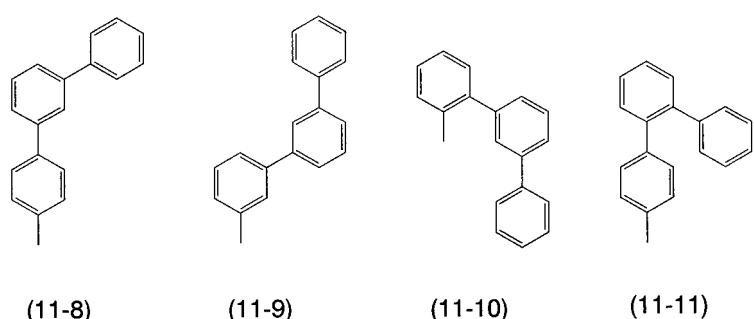
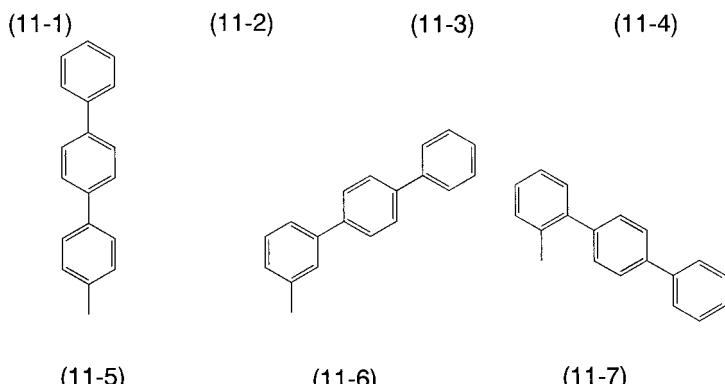
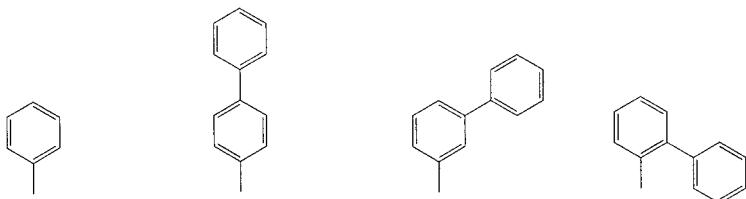
10

20

30

40

【化11】

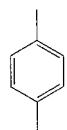


【0064】

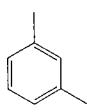
また、炭素数6～25のアリーレン基としては、具体的には、構造式(12-1)～(12-9)に示す置換基が挙げられる。

【0065】

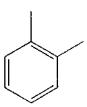
【化 1 2】



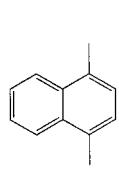
(12-1)



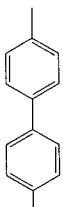
(12-2)



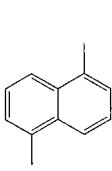
(12-3)



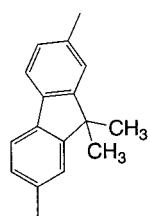
(12-4)



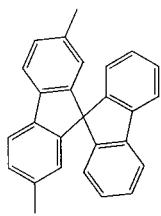
(12-5)



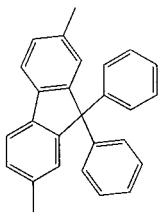
(12-6)



(12-7)



(12-8)



(12-9)

【 0 0 6 6 】

よって、一般式(1)におけるアミン骨格、すなわち一般式(21)で表されるアミン骨格としては、具体的には、構造式(21-1)～(21-73)に示す構造が挙げられる。

【 0 0 6 7 】

【化 1 3】



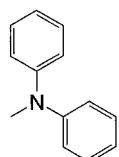
【 0 0 6 8 】

10

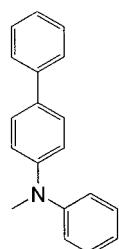
20

30

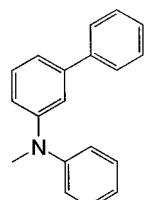
【化14】



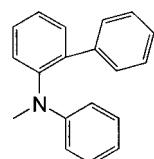
(21-1)



(21-2)



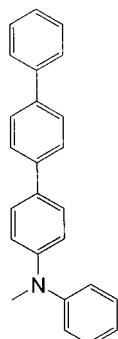
(21-3)



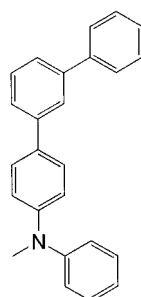
(21-4)

【0069】

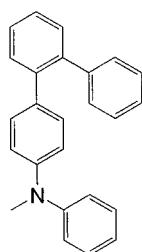
【化15】



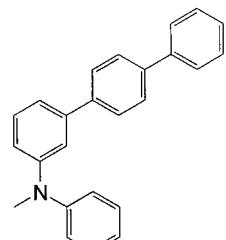
(21-5)



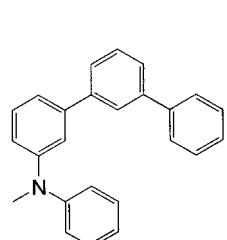
(21-6)



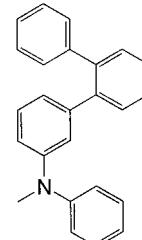
(21-7)



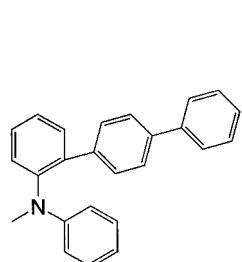
(21-8)



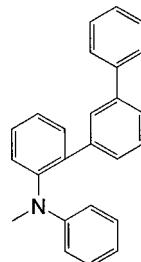
(21-9)



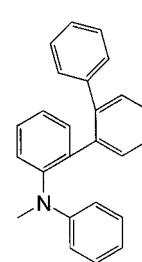
(21-10)



(21-11)



(21-12)



(21-13)

10

20

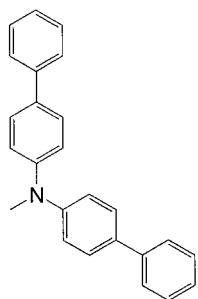
30

40

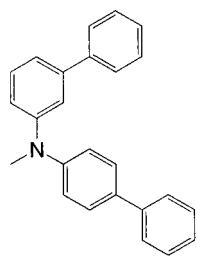
50

【 0 0 7 0 】

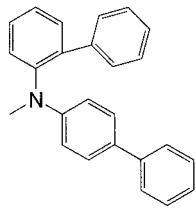
【 化 1 6 】



(21-14)

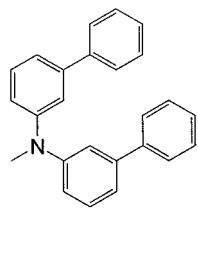


(21-15)

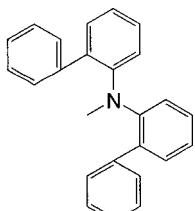


(21-16)

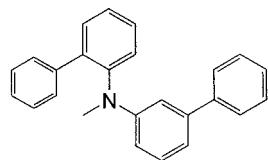
10



(21-17)



(21-18)

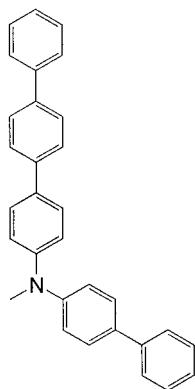


(21-19)

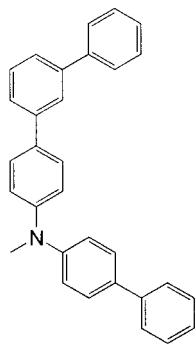
20

【 0 0 7 1 】

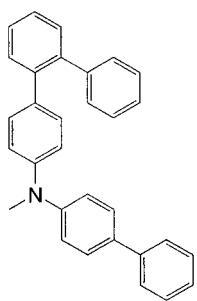
【化17】



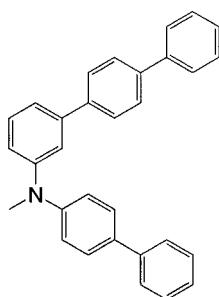
(21-20)



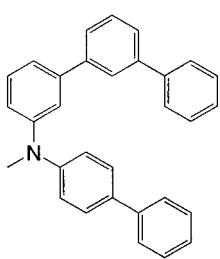
(21-21)



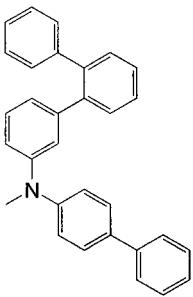
(21-22)



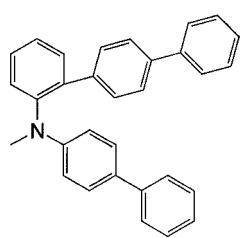
(21-23)



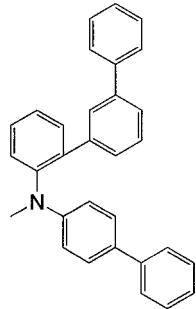
(21-24)



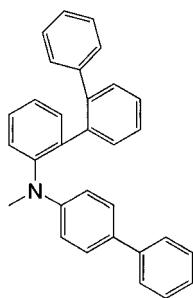
(21-25)



(21-26)



(21-27)



(21-28)

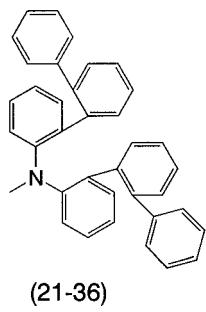
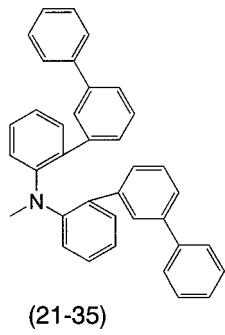
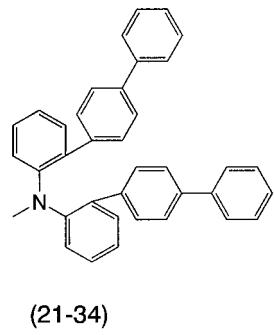
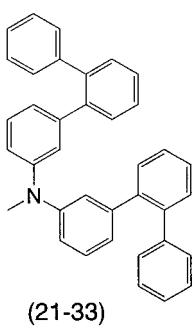
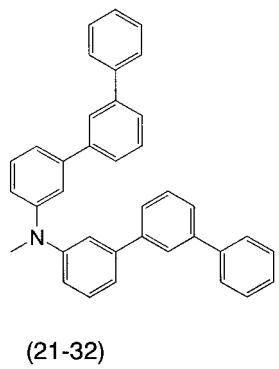
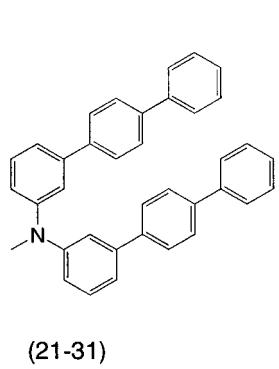
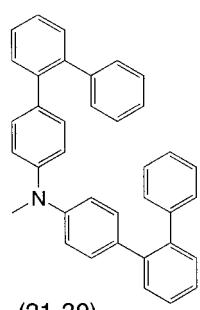
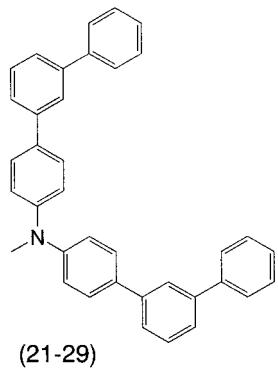
【0072】

10

20

30

【化18】



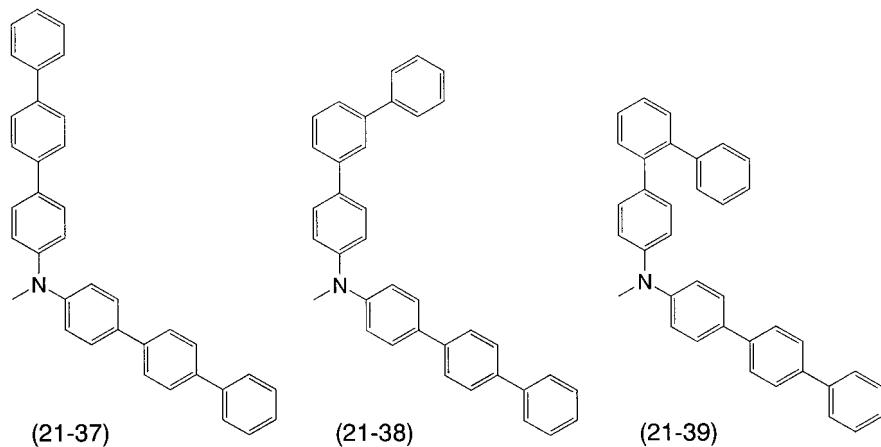
10

20

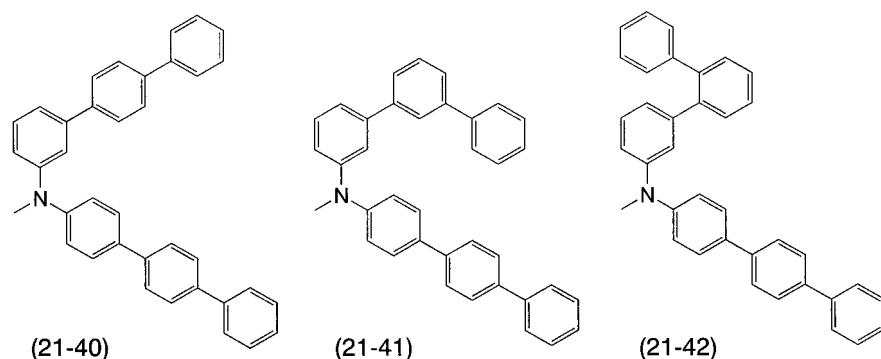
30

【0073】

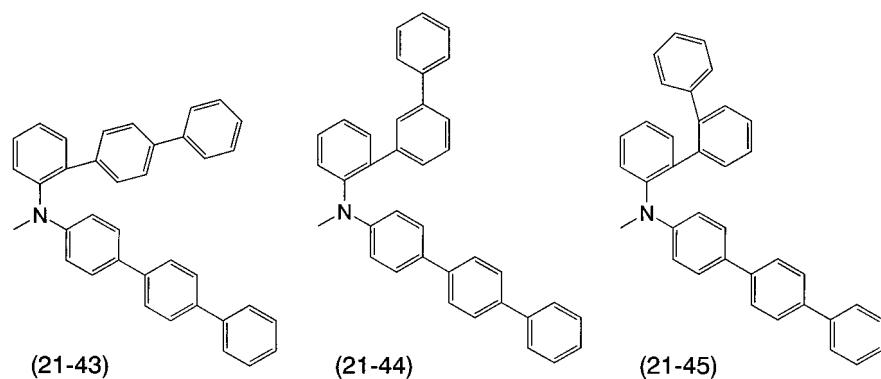
【化19】



10



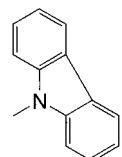
20



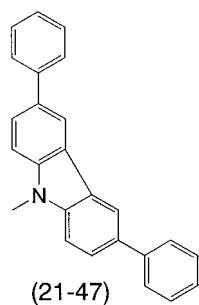
30

【0074】

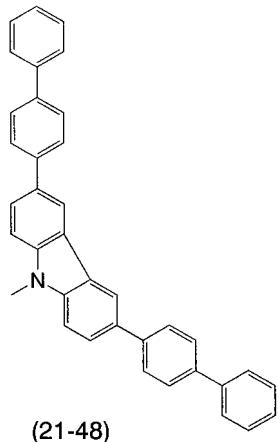
【化 2 0】



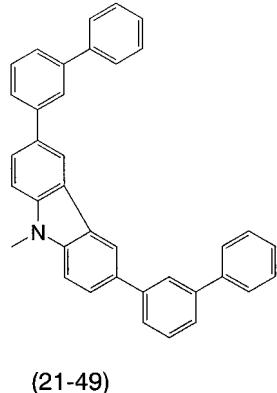
(21-46)



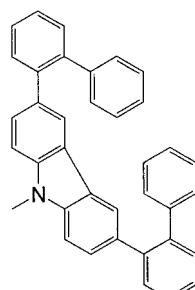
(21-47)



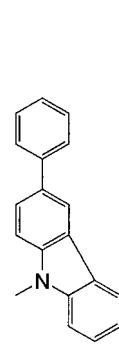
(21-48)



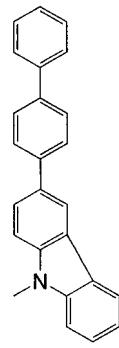
(21-49)



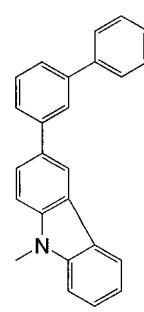
(21-50)



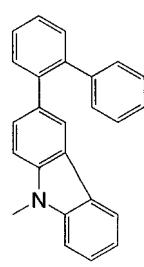
(21-51)



(21-52)



(21-53)



(21-54)

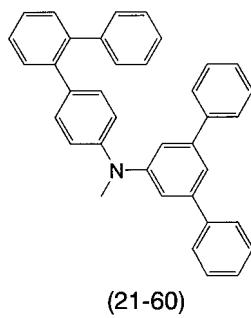
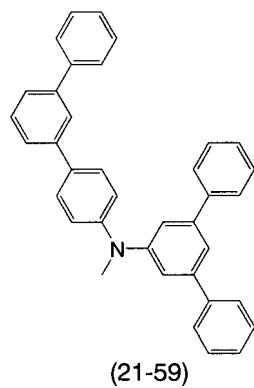
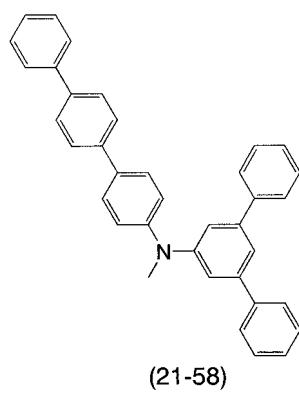
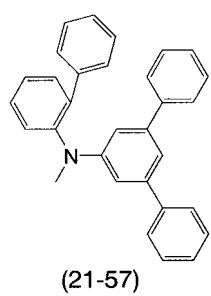
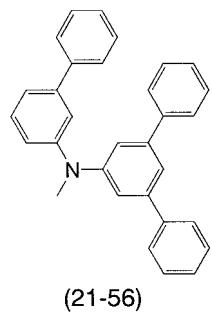
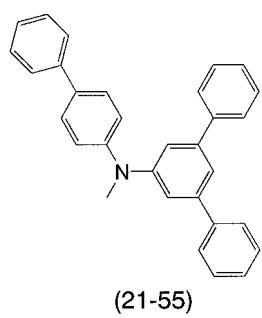
10

20

30

【 0 0 7 5 】

【化 2 1】



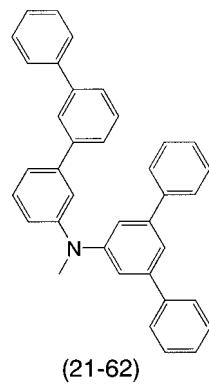
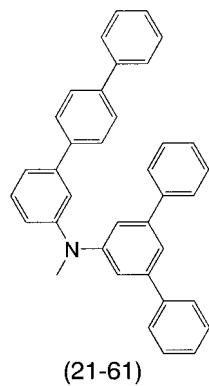
10

20

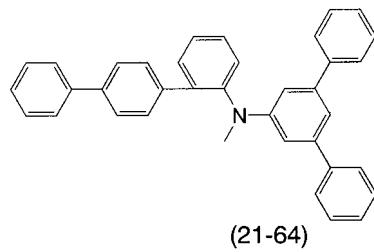
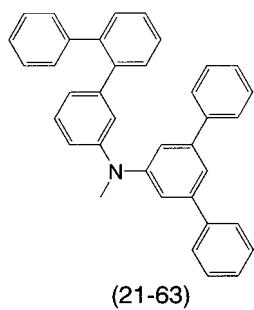
30

【0 0 7 6】

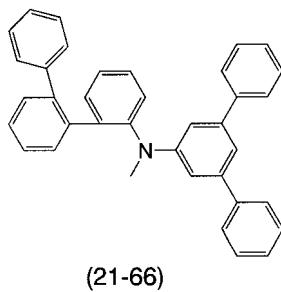
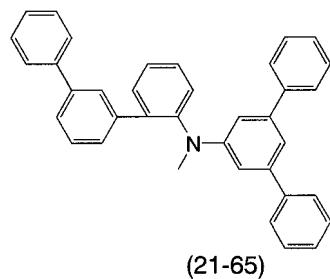
【化 2 2】



10



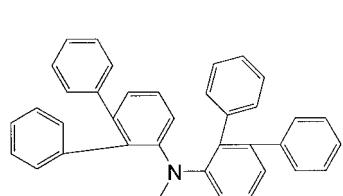
20



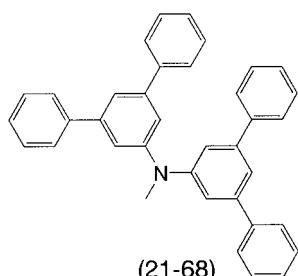
30

【 0 0 7 7 】

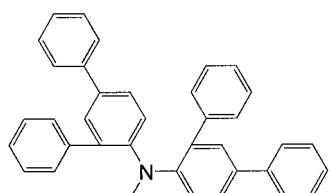
【化23】



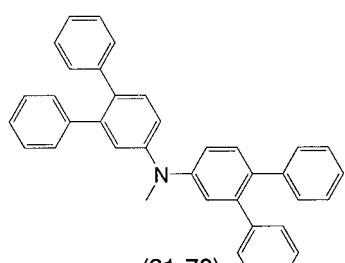
(21-67)



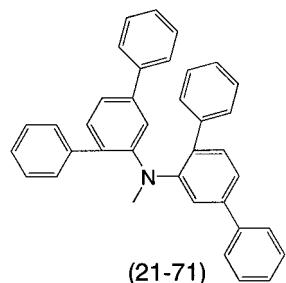
(21-68)



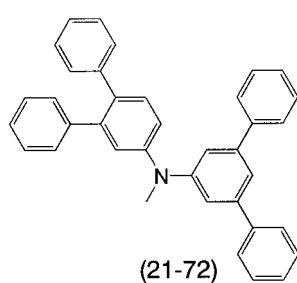
(21-69)



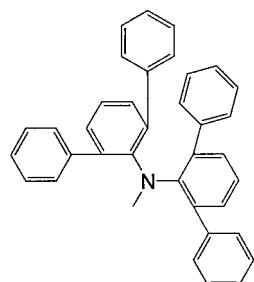
(21-70)



(21-71)



(21-72)



(21-73)

10

20

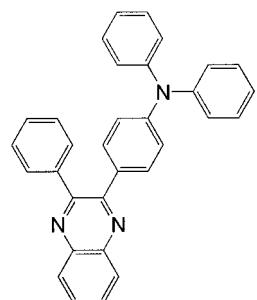
30

【0078】

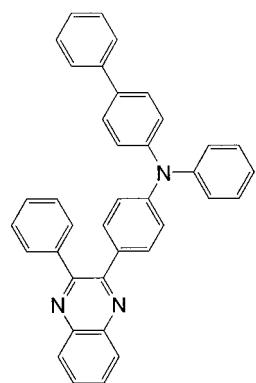
また、本発明のキノキサリン誘導体の具体例としては、構造式(101)～(259)に示されるキノキサリン誘導体を挙げることができる。ただし、本発明はこれらに限定されない。

【0079】

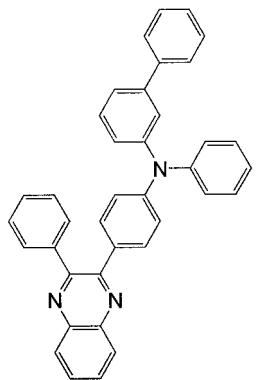
【化24】



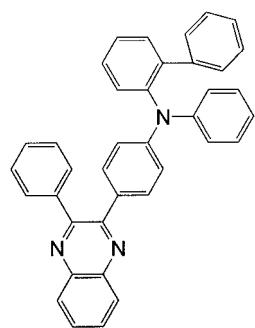
(101)



(102)



(103)



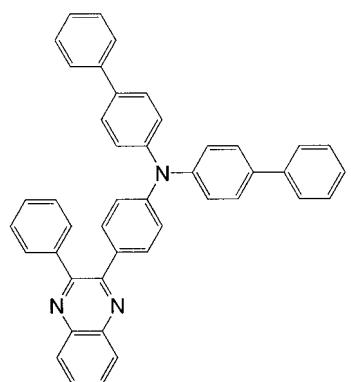
(104)

10

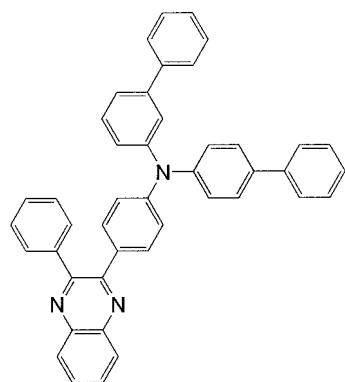
20

【0080】

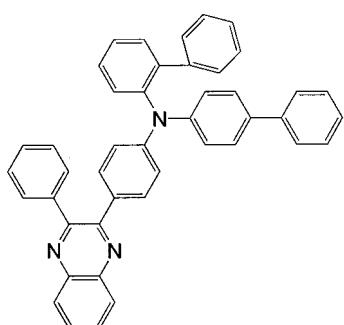
【化25】



(105)



(106)



(107)

10

20

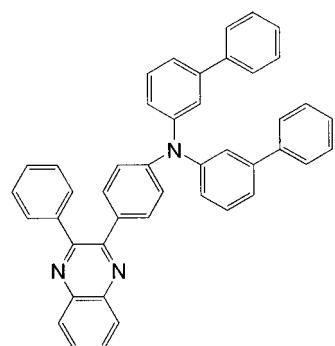
30

40

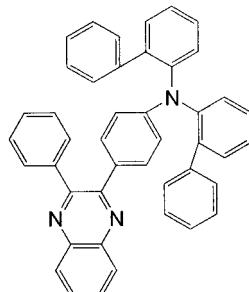
50

【0081】

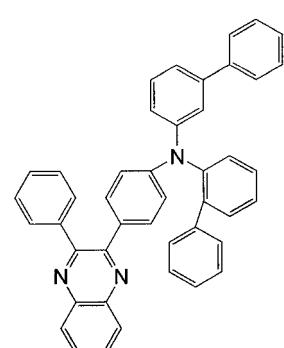
【化26】



(108)



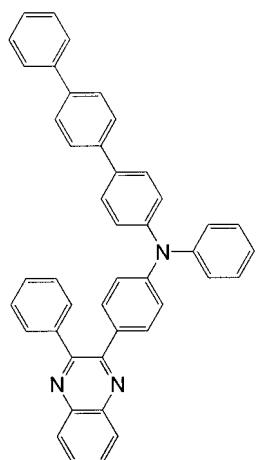
(109)



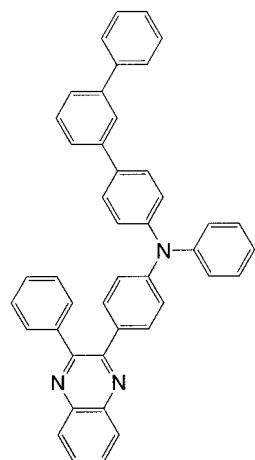
(110)

【 0 0 8 2 】

【 化 2 7 】

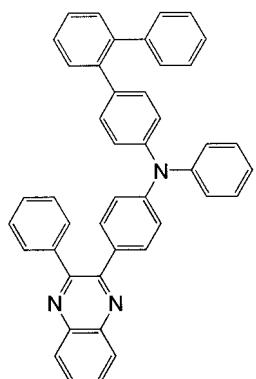


(111)



(112)

10



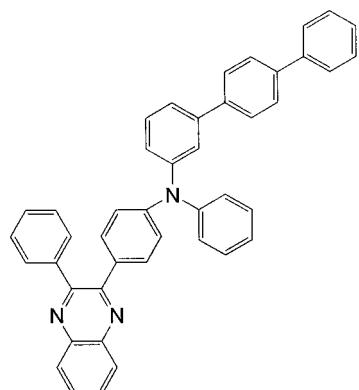
(113)

20

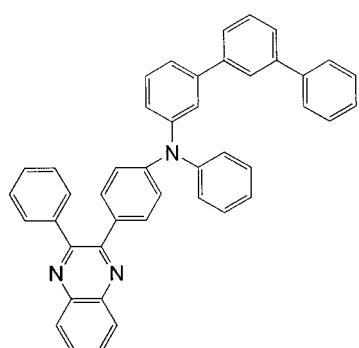
30

【 0 0 8 3 】

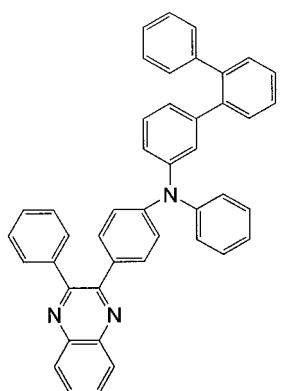
【化28】



(114)



(115)



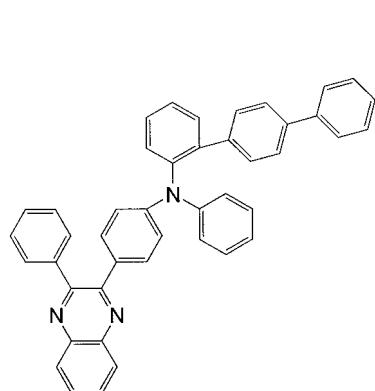
(116)

10

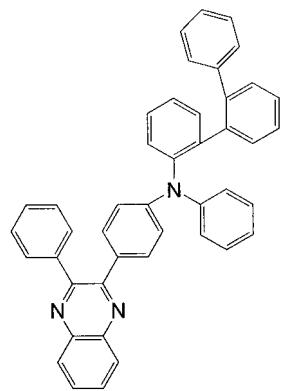
20

【0084】

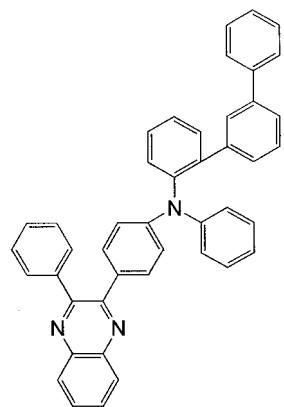
【化29】



(117)



(118)



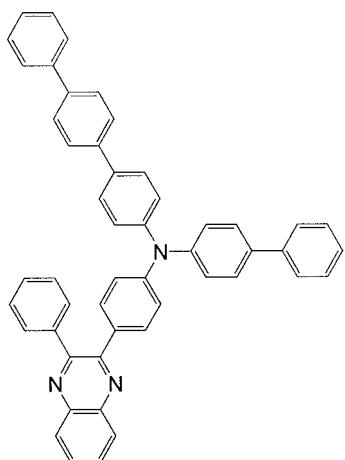
(119)

10

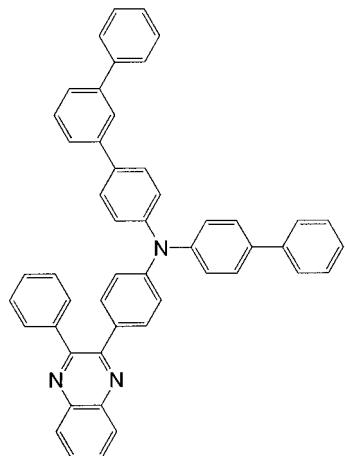
20

【0085】

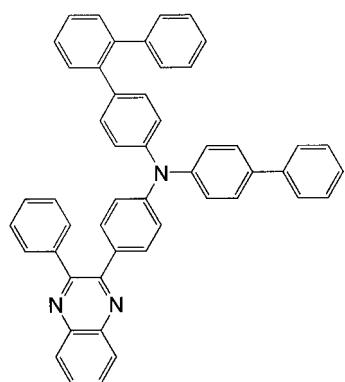
【化 3 0】



(120)



(121)



(122)

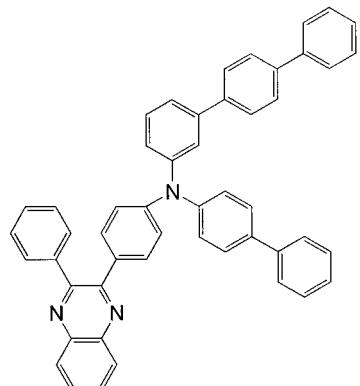
【 0 0 8 6 】

10

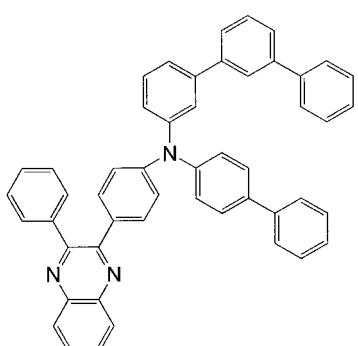
20

30

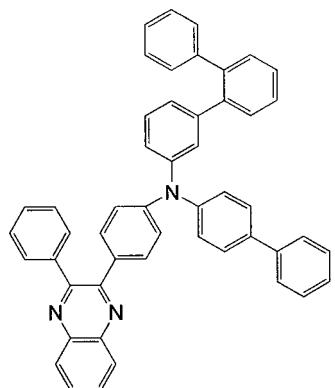
【化 3 1】



(123)



(124)



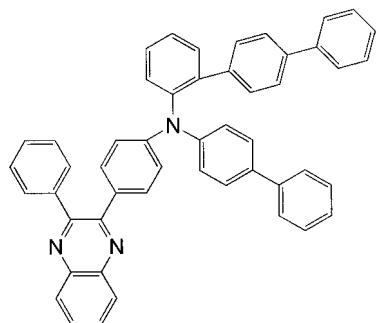
(125)

10

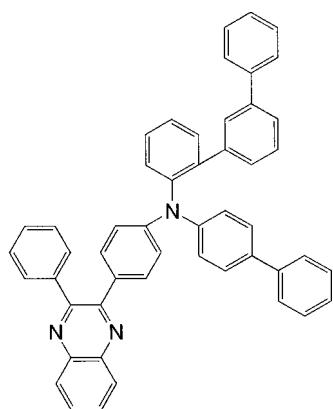
20

【 0 0 8 7 】

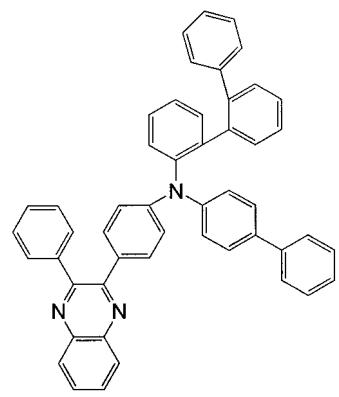
【化32】



(126)



(127)



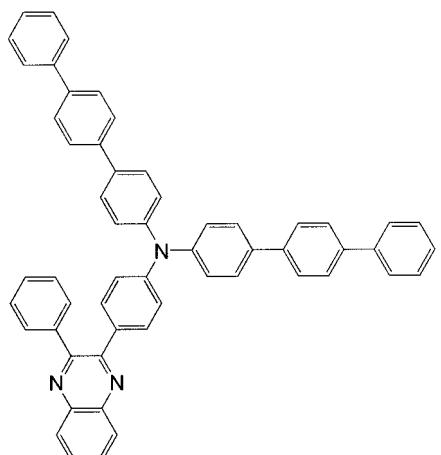
(128)

10

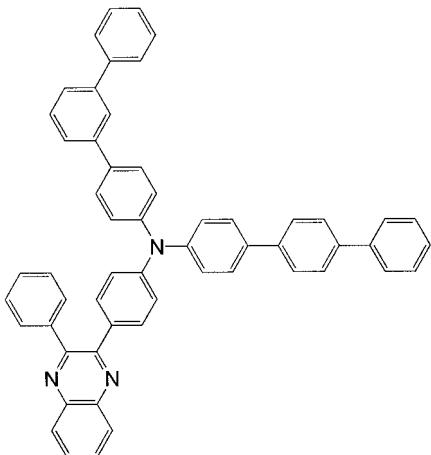
20

【0088】

【化33】

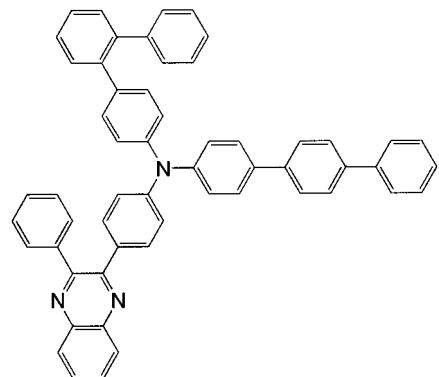


(129)



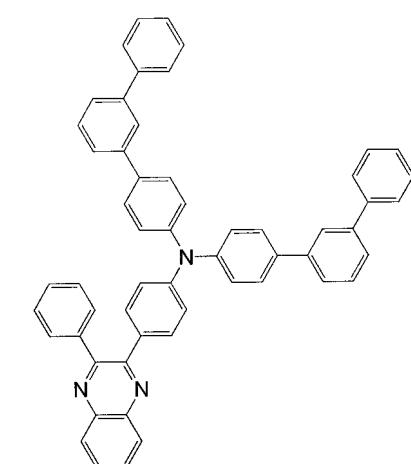
(130)

10

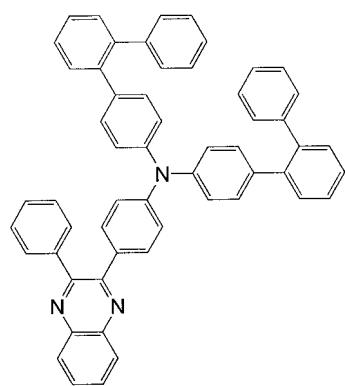


(131)

20



(132)



(133)

40

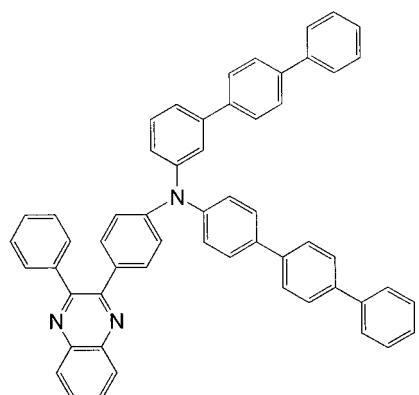
【0089】

【化34】

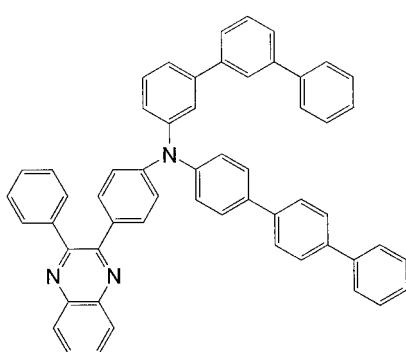
30

【化34】

【化 3 5】

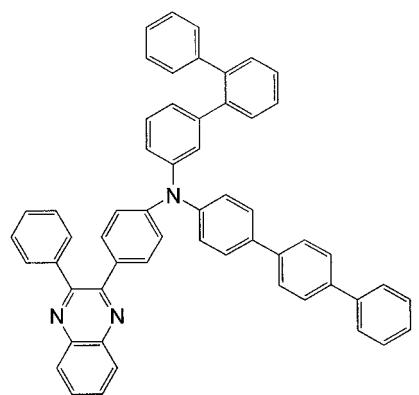


(134)



(135)

10

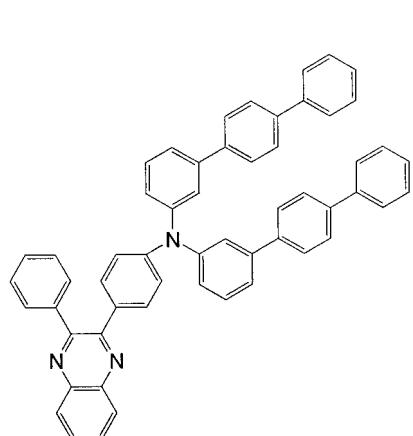


(136)

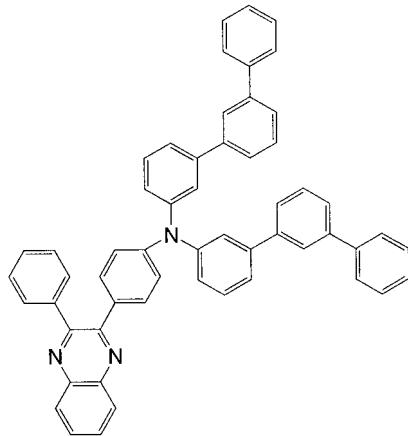
20

【 0 0 9 1 】

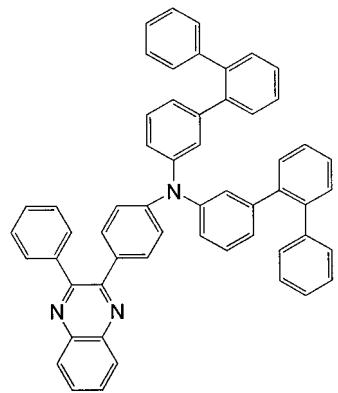
【化36】



(137)



(138)



(139)

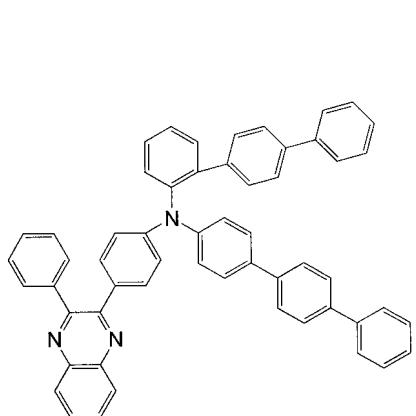
【0092】

10

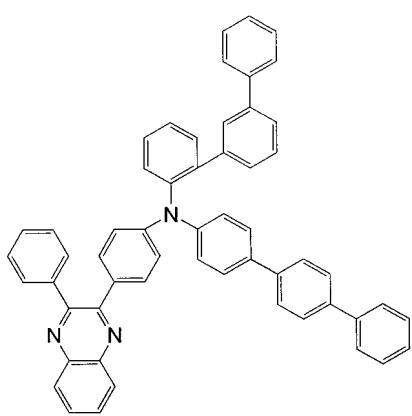
20

30

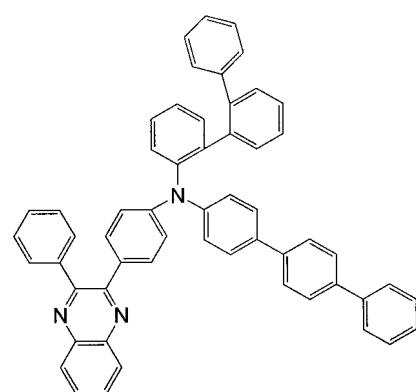
【化37】



(140)



(141)



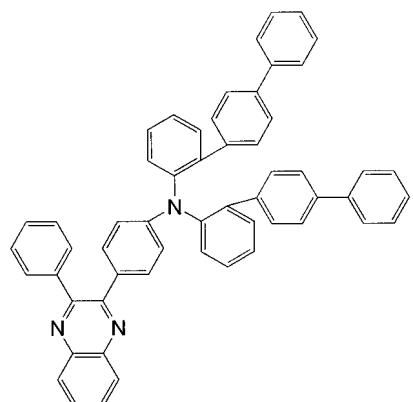
(142)

【0093】

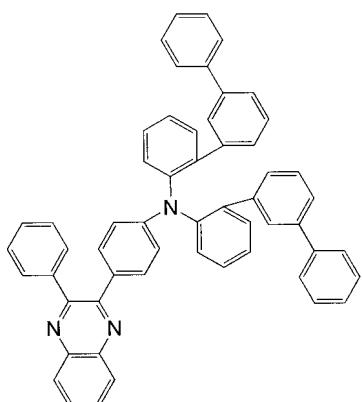
10

20

【化38】

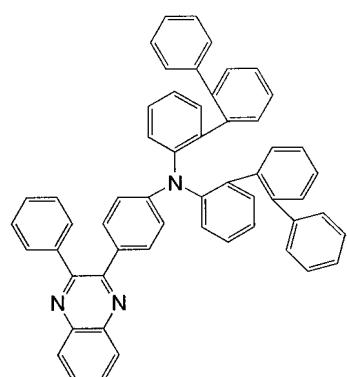


(143)



(144)

10

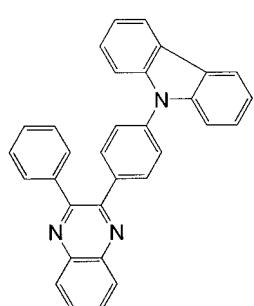


(145)

20

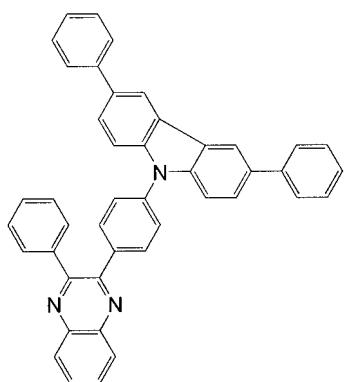
【0 0 9 4】

【化39】



(146)

30

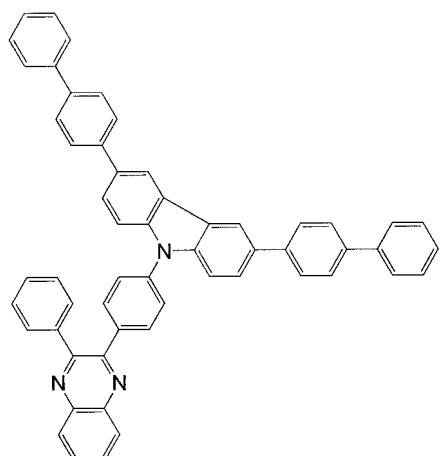


(147)

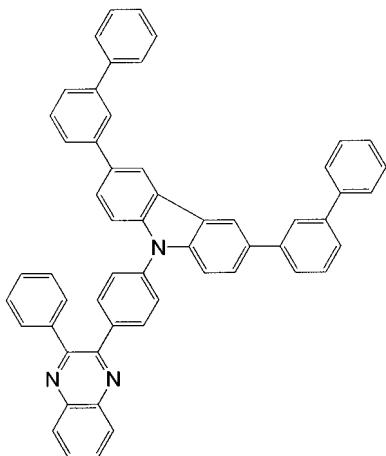
40

【0 0 9 5】

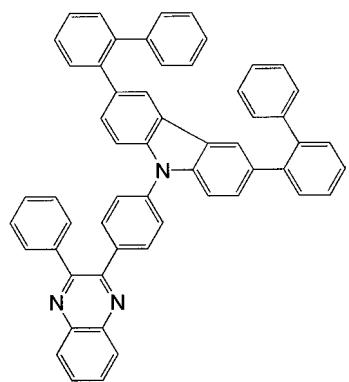
【化40】



(148)



(149)



(150)

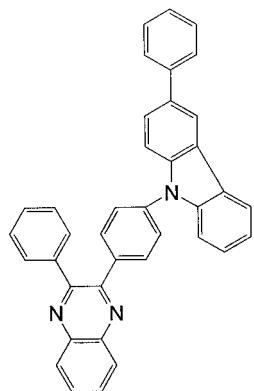
【0096】

10

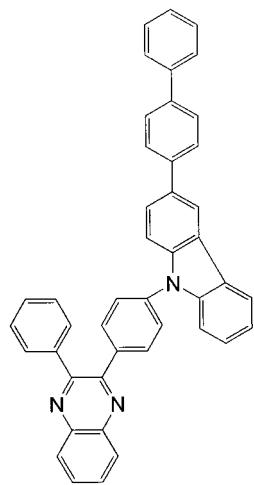
20

30

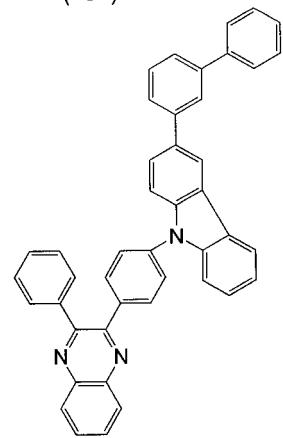
【化41】



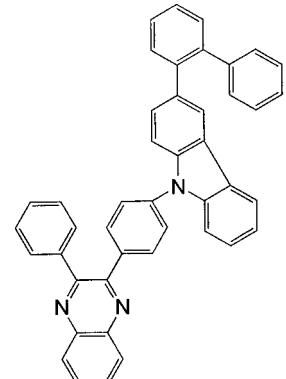
(151)



(152)



(153)



(154)

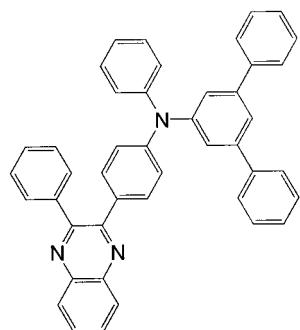
【0097】

10

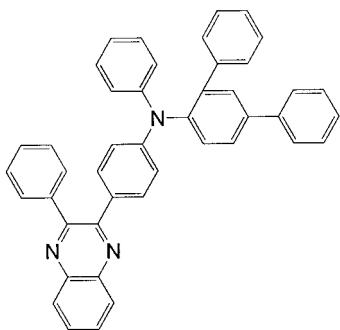
20

30

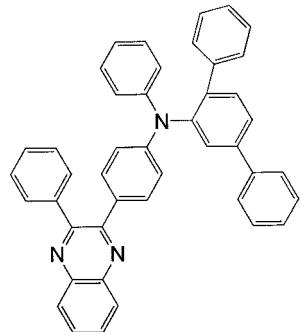
【化42】



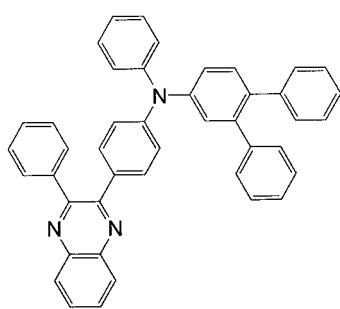
(155)



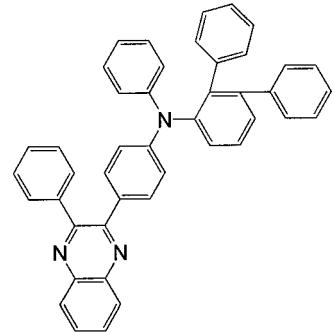
(156)



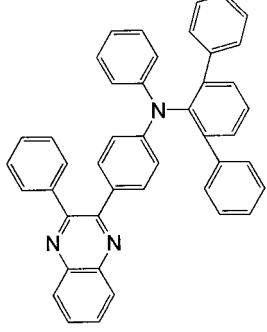
(157)



(158)



(159)



(160)

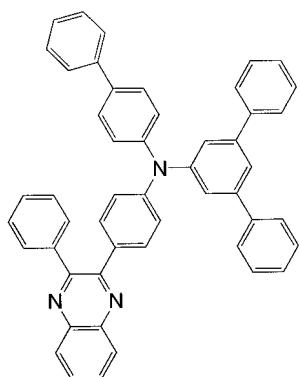
10

20

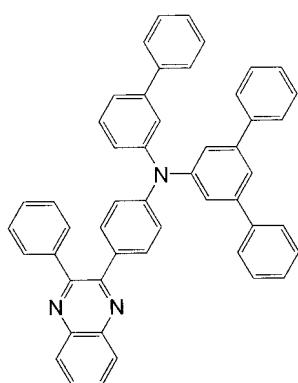
30

【0098】

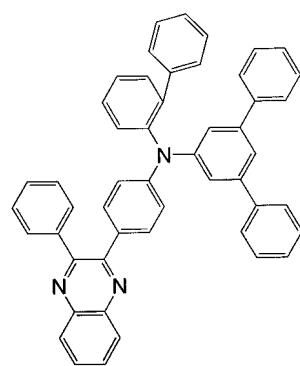
【化43】



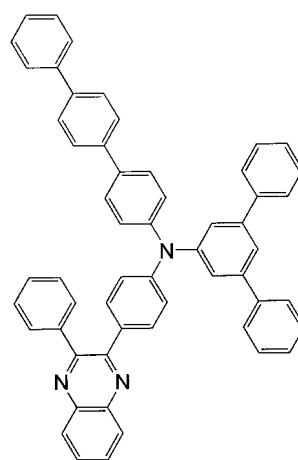
(161)



(162)



(163)



(164)

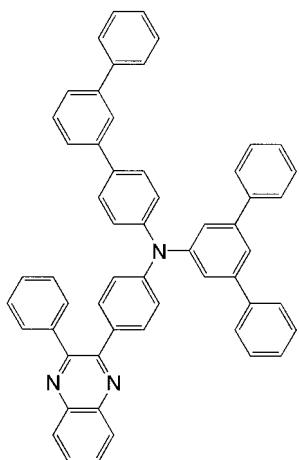
10

20

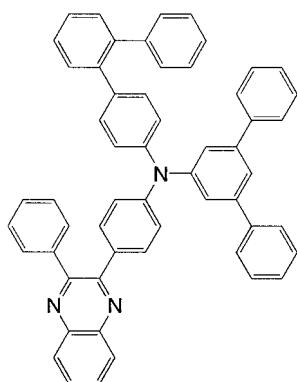
30

【0099】

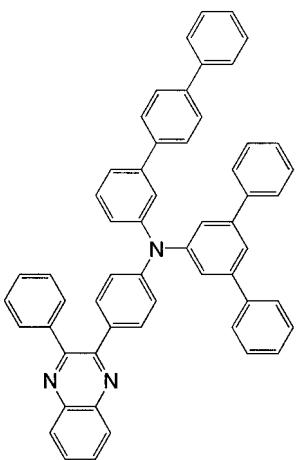
【化44】



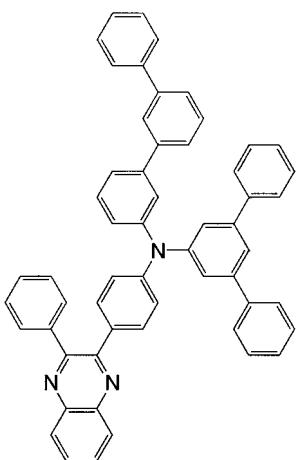
(165)



(166)



(167)



(168)

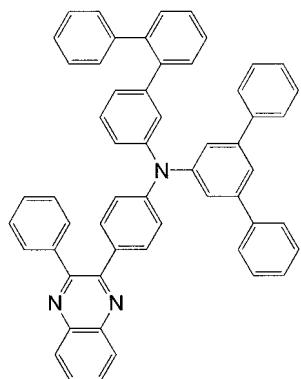
10

20

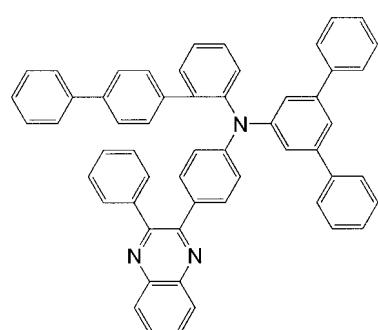
30

【0100】

【化 4 5 】

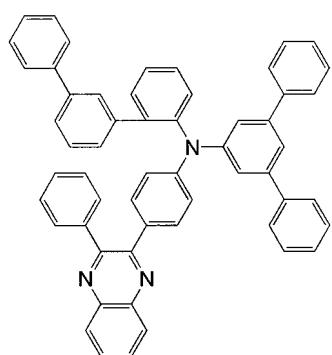


(169)

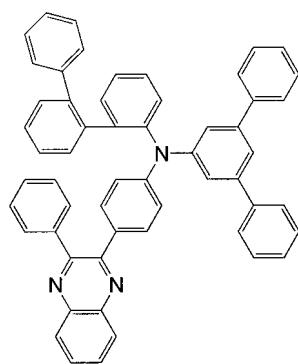


(170)

10



(171)

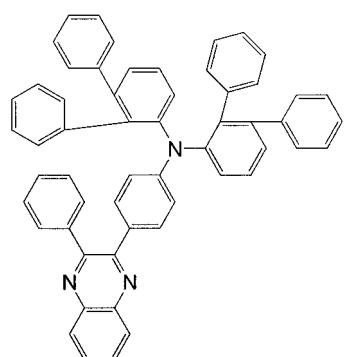


(172)

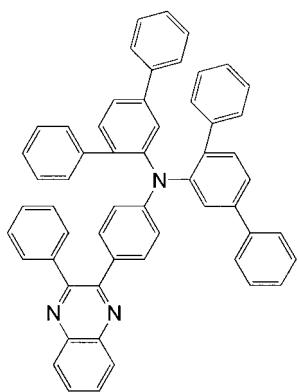
20

【 0 1 0 1 】

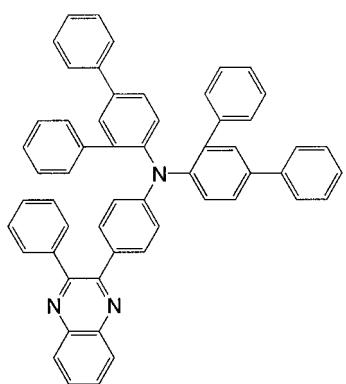
【化46】



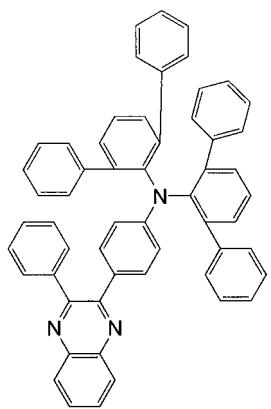
(173)



(174)



(175)



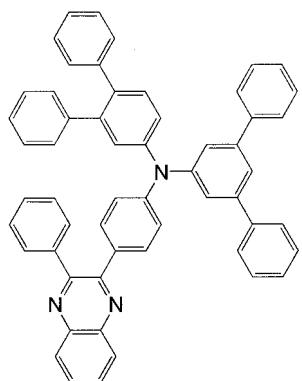
(176)

10

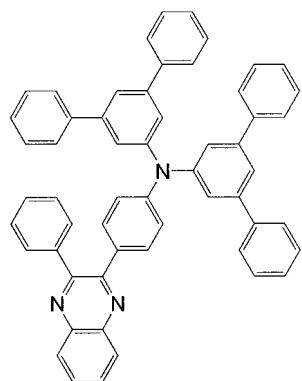
20

【0 1 0 2】

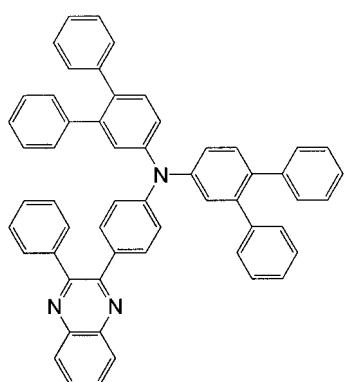
【化47】



(177)



(178)



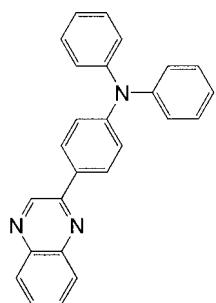
(179)

10

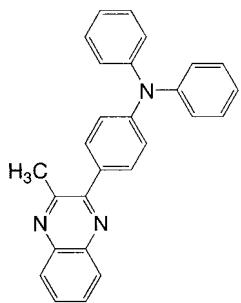
20

【0103】

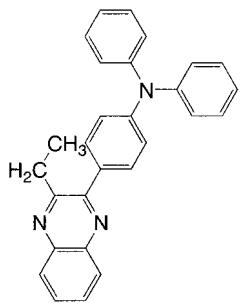
【化48】



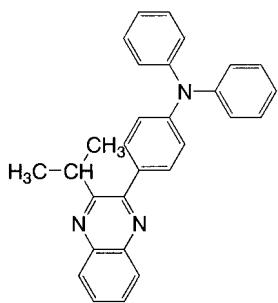
(180)



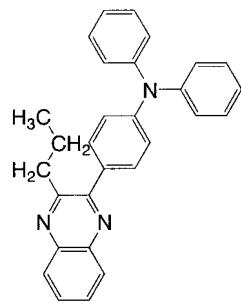
(181)



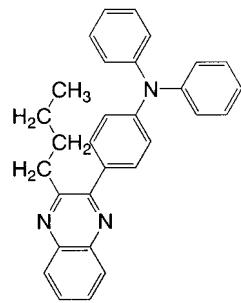
(182)



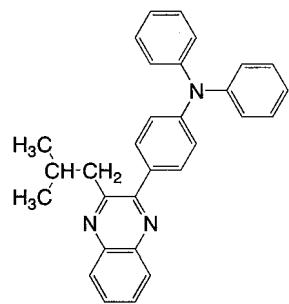
(183)



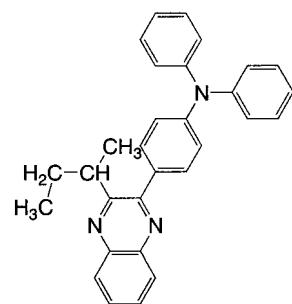
(184)



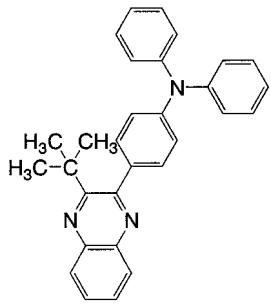
(185)



(186)



(187)



(188)

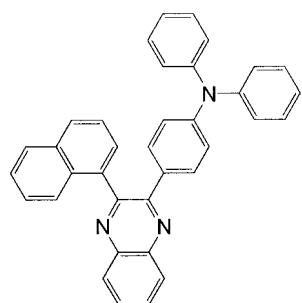
【0104】

10

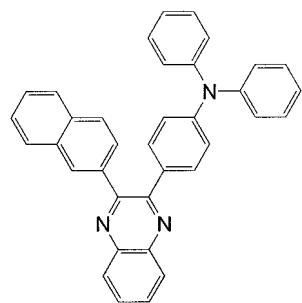
20

30

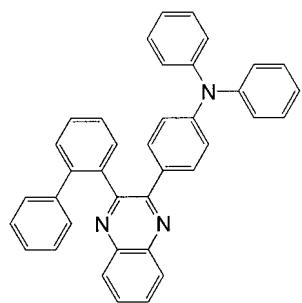
【化49】



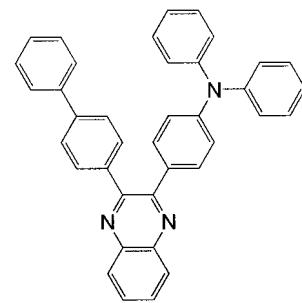
(189)



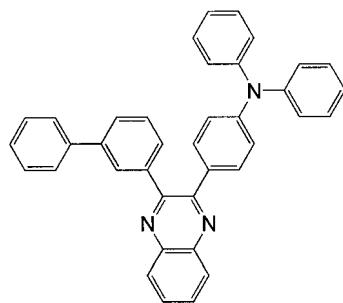
(190)



(191)



(192)



(193)

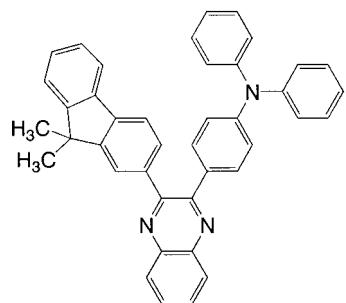
【0105】

10

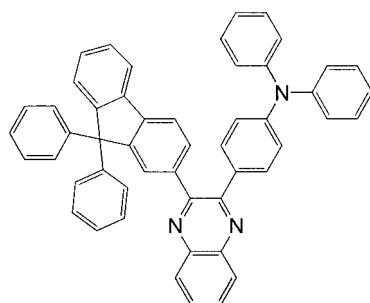
20

30

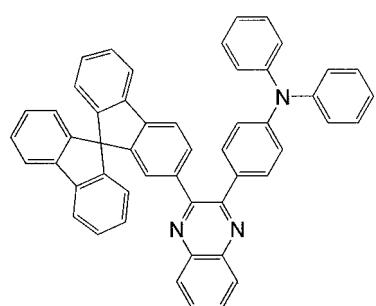
【化 5 0】



(194)



(195)



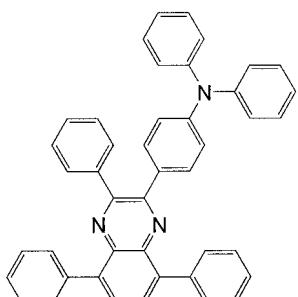
(196)

【 0 1 0 6 】

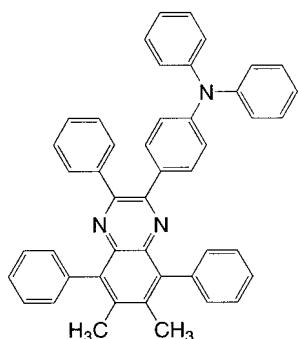
10

20

【化 5 1】

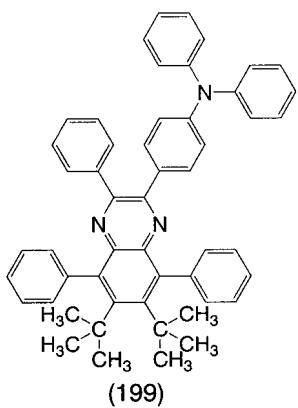


(197)

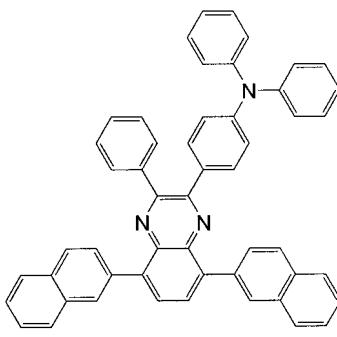


(198)

10

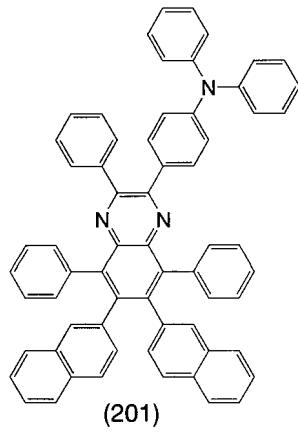


(199)

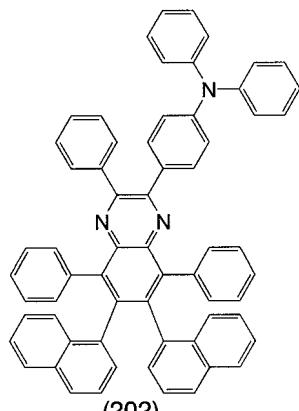


(200)

20



(201)

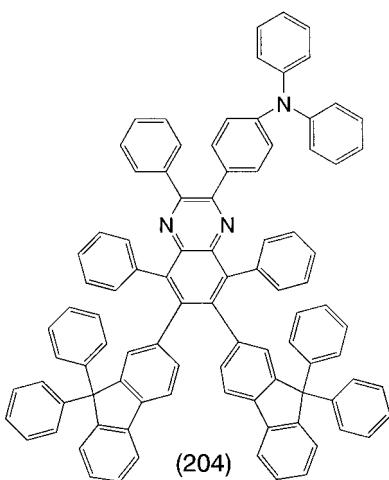
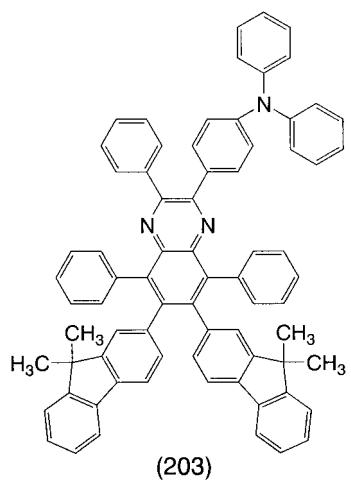


(202)

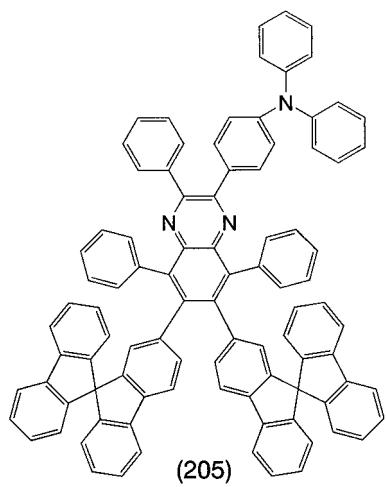
30

【 0 1 0 7 】

【化52】



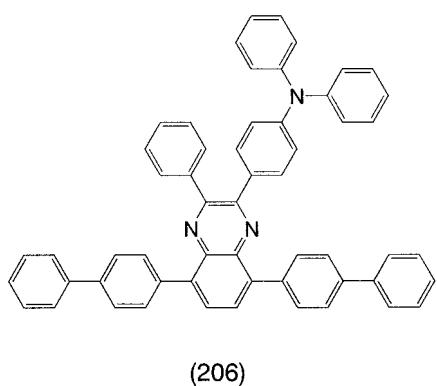
10



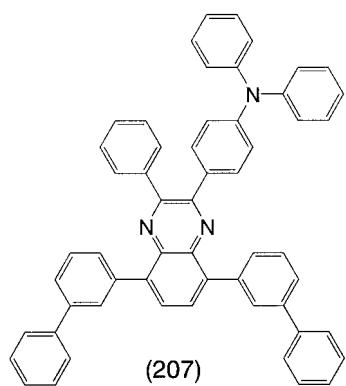
20

【0108】

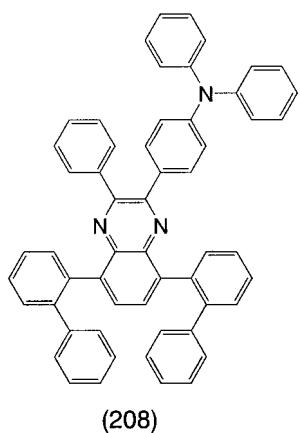
【化53】



(206)



(207)



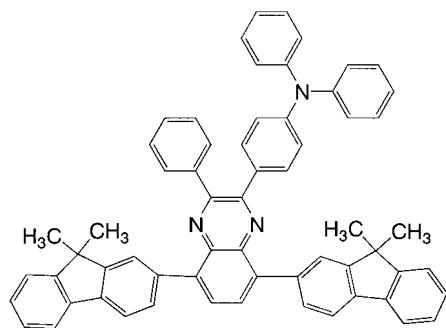
(208)

10

20

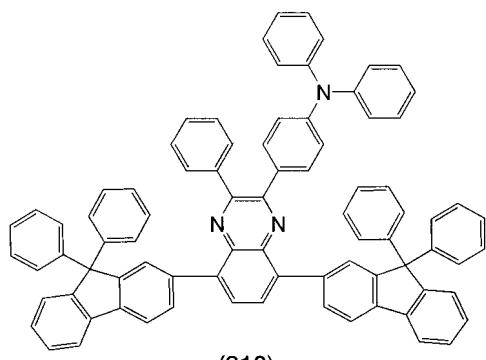
【0109】

【化 5 4】



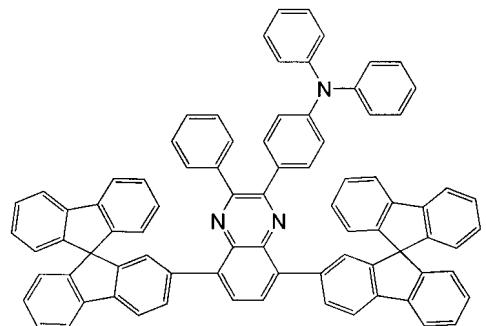
(209)

10



(210)

20

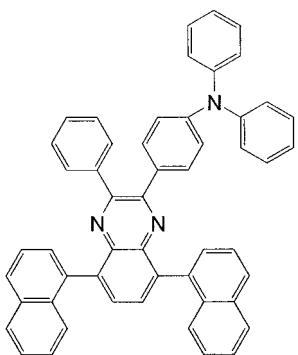


(211)

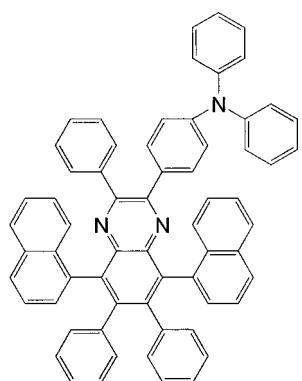
30

【 0 1 1 0 】

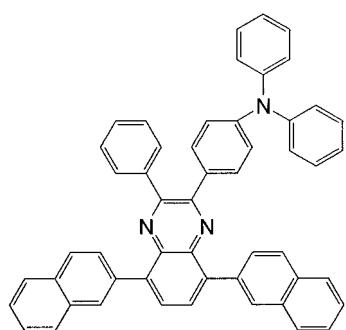
【化 5 5】



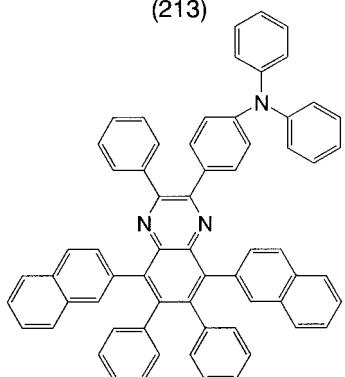
(212)



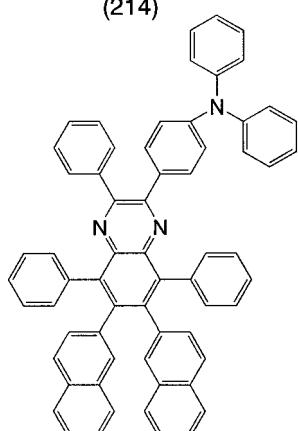
(213)



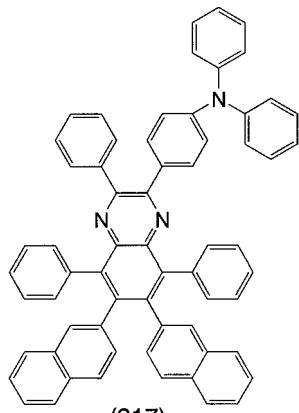
(214)



(215)



(216)



(217)

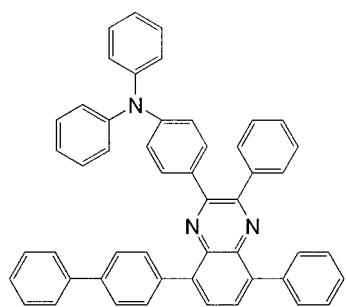
10

20

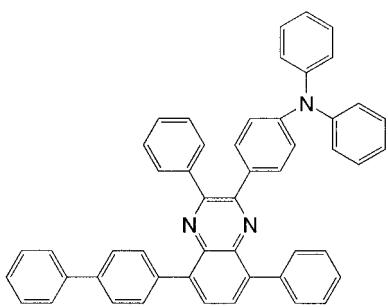
30

【 0 1 1 1 】

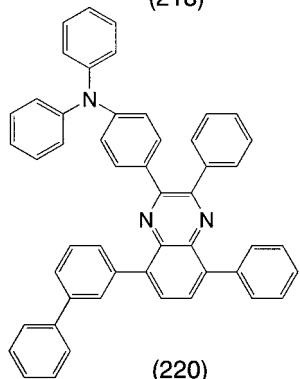
【化56】



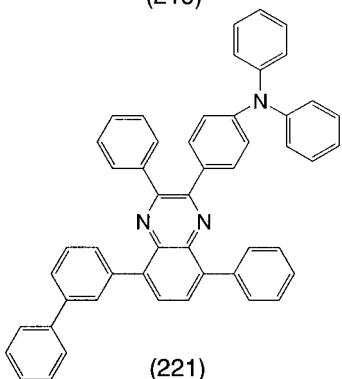
(218)



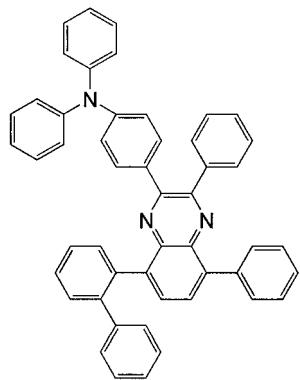
(219)



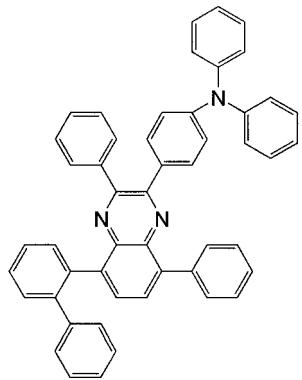
(220)



(221)



(222)



(223)

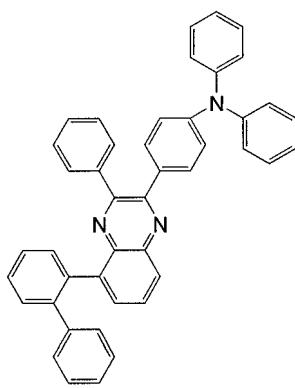
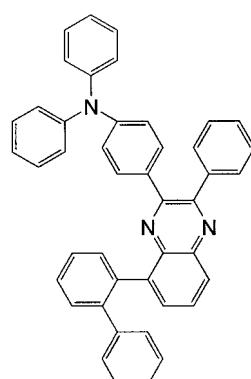
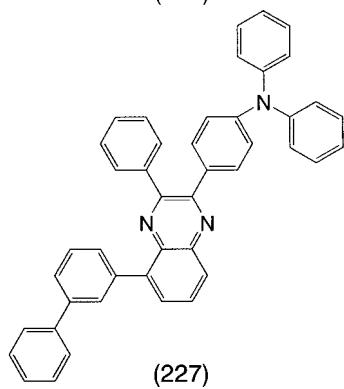
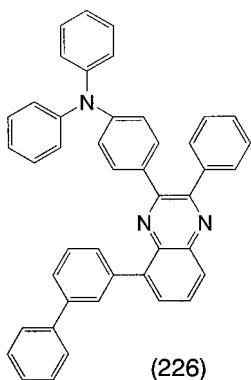
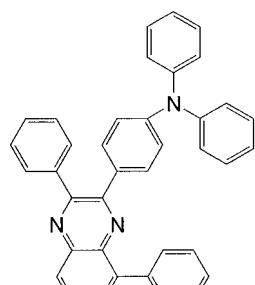
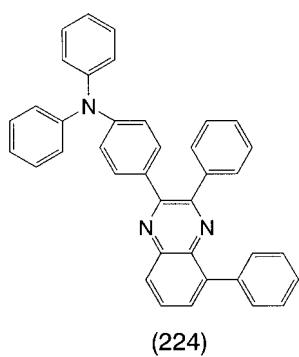
10

20

30

【0 1 1 2】

【化 5 7】



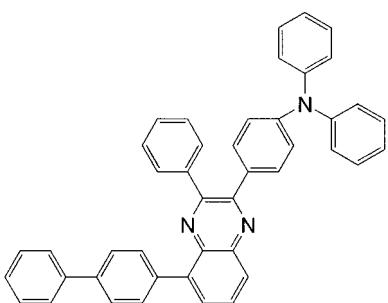
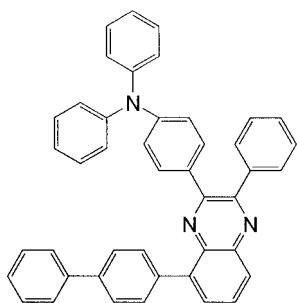
10

20

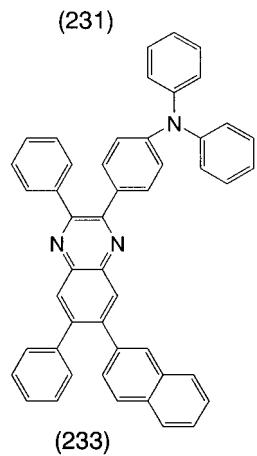
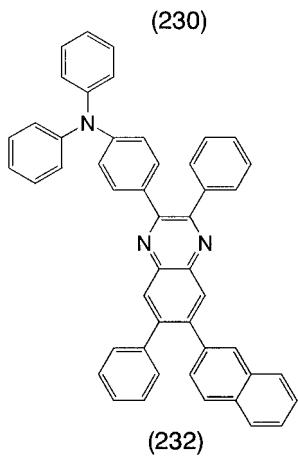
30

【 0 1 1 3 】

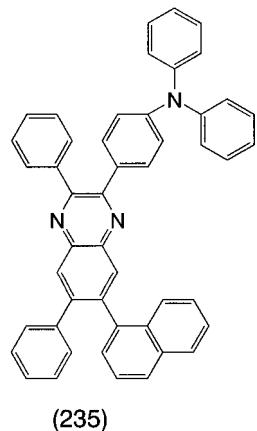
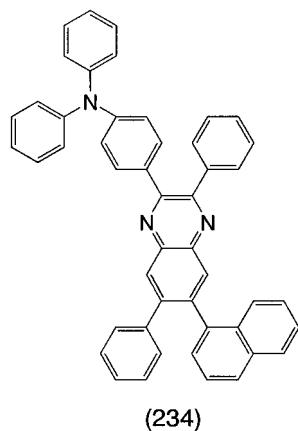
【化 5 8】



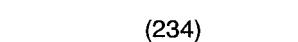
10



20

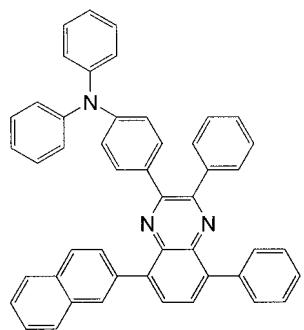


30

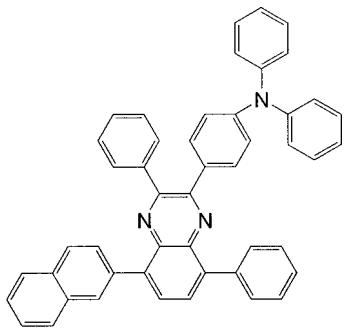


【 0 1 1 4 】

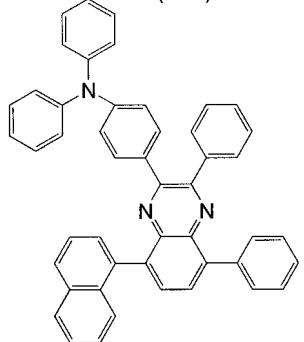
【化59】



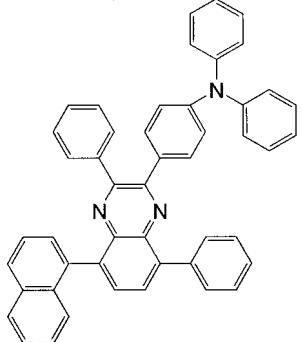
(236)



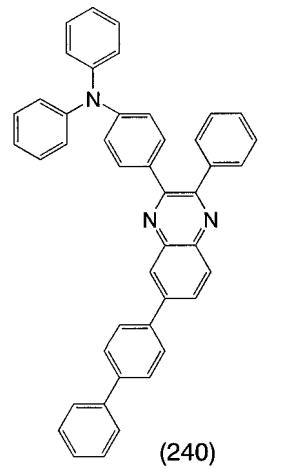
(237)



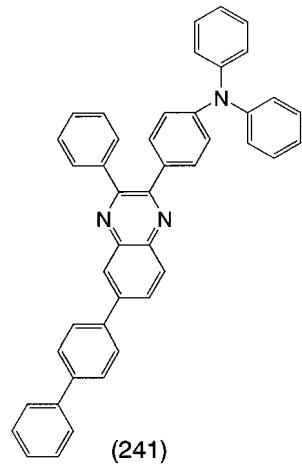
(238)



(239)



(240)



(241)

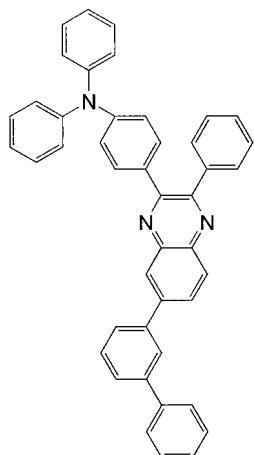
10

20

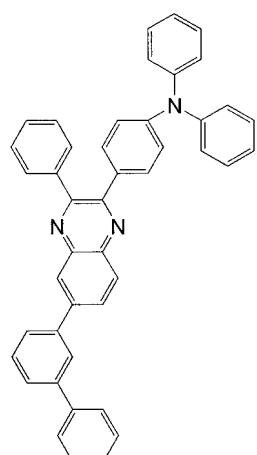
30

【0115】

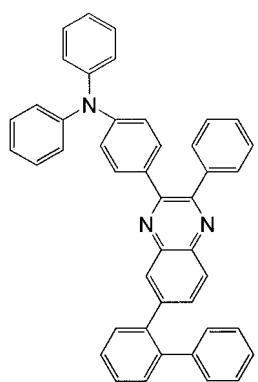
【化 6 0】



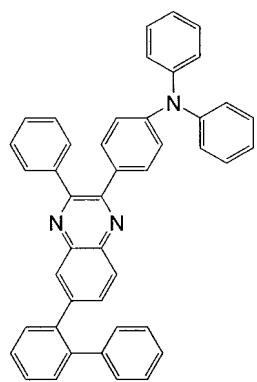
(242)



(243)



(244)



(245)

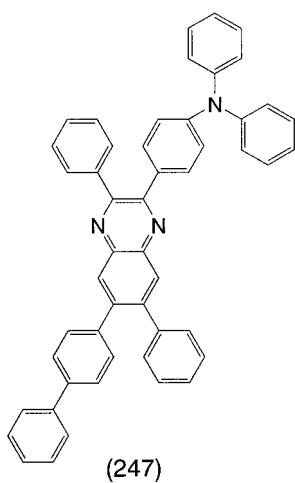
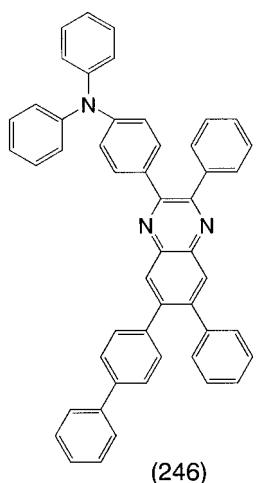
【 0 1 1 6 】

10

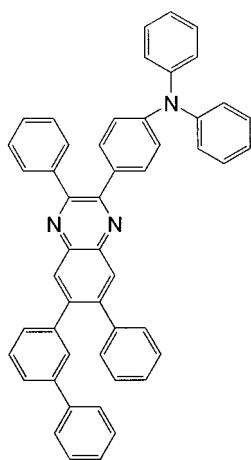
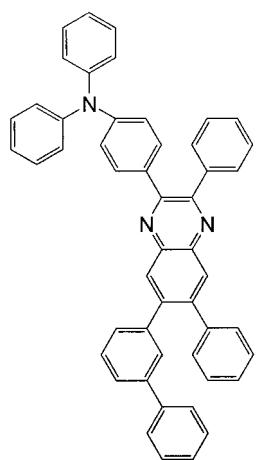
20

30

【化61】



10

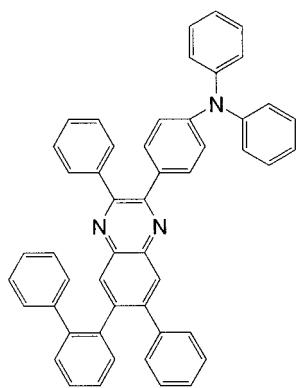
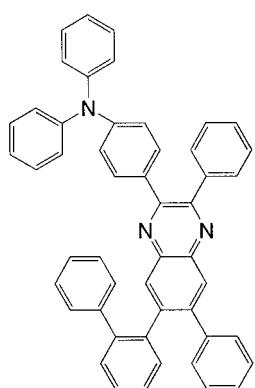


20

30

【0 1 1 7】

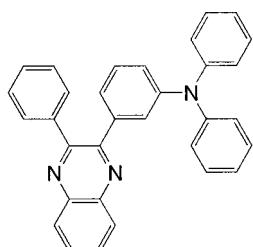
【化62】



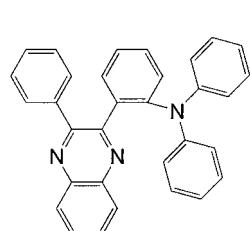
40

【0 1 1 8】

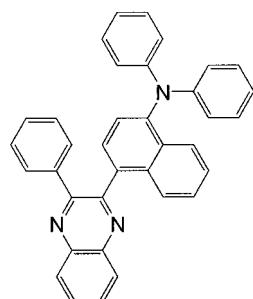
【化63】



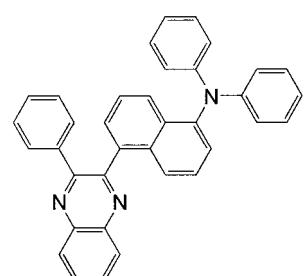
(252)



(253)



(254)



(255)

10

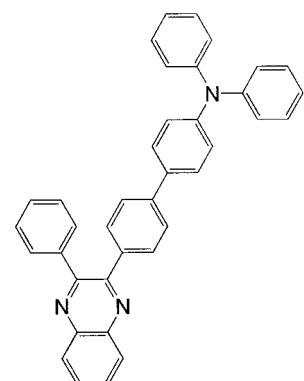
20

30

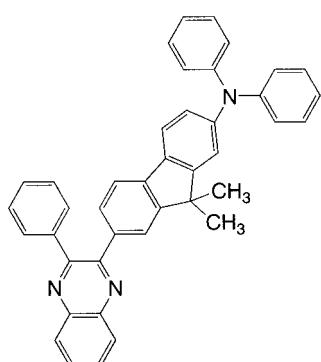
40

【0119】

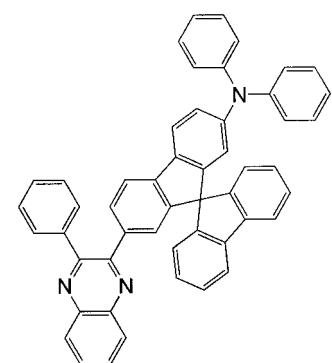
【化64】



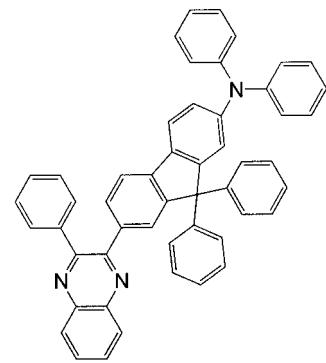
(256)



(257)



(258)



(259)

【0120】

本発明のキノキサリン誘導体は、正孔輸送性のアミン骨格と、電子輸送性のキノキサリン骨格とを同一分子内に有するため、バイポーラ性である。また、本発明のキノキサリン

50

誘導体はバイポーラ性なので、発光素子において、発光性物質を分散させる材料として好適に用いることができる。また、本発明のキノキサリン誘導体は、キャリアを輸送することができるため、発光素子において、キャリア輸送層として用いることができる。

【0121】

また、一般式(1)で表されるキノキサリン誘導体は、Ar¹およびAr²が縮合環ではないため、高い一重項励起エネルギーを有する。よって、発光素子において、発光性物質を分散させる材料、または、発光性物質を含む層に接する層に好適に用いることができる。つまり、発光性物質と接するように、本発明のキノキサリン誘導体を用いることができる。特に、上記キノキサリン誘導体は、高い一重項励起エネルギーを有するため、蛍光発光性物質と接するように用いることができる。本発明のキノキサリン誘導体は、高い一重項励起エネルギーを有するため、比較的短波長の蛍光発光性物質に接するように用いた場合でも、蛍光発光性物質からの発光を消光してしまうことを防ぐことができる。

10

【0122】

また、上記のキノキサリン誘導体において、三重項励起エネルギーの点から、Ar¹およびR¹¹～R¹⁵は、縮合環でないことが好ましい。つまり、上記一般式(1)で表されるキノキサリン誘導体において、Ar¹およびR¹¹～R¹⁵が縮合環でないキノキサリン誘導体であることが好ましい。

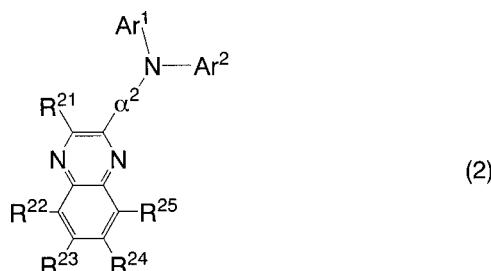
【0123】

つまり、下記一般式(2)で表されるキノキサリン誘導体であることが好ましい。

20

【0124】

【化65】



【0125】

30

(式中、Ar¹～Ar²は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、Ar¹～Ar²は、結合していても良い。Ar²は、炭素数6～25の縮合環でないアリーレン基を表す。R²¹～R²⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または炭素数6～25の置換もしくは無置換の縮合環でないアリール基のいずれかを表す。)

【0126】

40

一般式(2)において、Ar²およびR²¹～R²⁵が縮合環でないことにより、高い三重項励起エネルギーを有するキノキサリン誘導体を得ることができる。よって、発光素子において、燐光発光性物質を分散させる材料、または、燐光発光性物質を含む層に接する層に好適に用いることができる。つまり、燐光発光性物質と接するように、本発明のキノキサリン誘導体を用いることができる。本発明のキノキサリン誘導体は、高い三重項励起エネルギーを有するため、比較的短波長の燐光発光性物質に接するように用いた場合でも、燐光発光性物質からの発光を消光してしまうことを防ぐことができる。

【0127】

縮合環でないアリール基として具体的には、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のフルオレン基などが挙げられる。また、縮合環でないアリーレン基として具体的にはフェニレン基、またはビフェニル-ジイル基、またはフルオレン-ジイル基などが挙げられる。

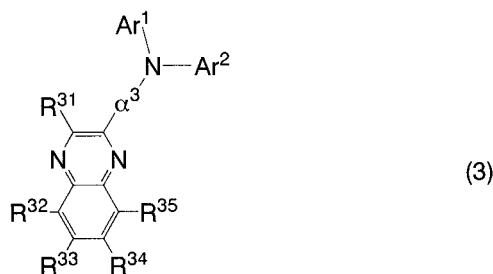
【0128】

50

つまり、下記一般式(3)で表されるキノキサリン誘導体であることが好ましい。

【0129】

【化66】



10

【0130】

(式中、Ar¹～Ar²は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、Ar¹～Ar²は、結合していても良い。³は、フェニレン基、またはビフェニル-ジイル基、またはフルオレン-ジイル基のいずれかを表す。R³¹～R³⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のフルオレン基のいずれかを表す。)

【0131】

一般式(3)において、合成の点から、³は、フェニレン基、またはビフェニル-ジイル基であることが好ましい。また、合成の点から、R³¹～R³⁵は、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、また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。これらの置換基は合成ステップ数が少なく、合成が容易である。また、合成に要するコストも少ない。

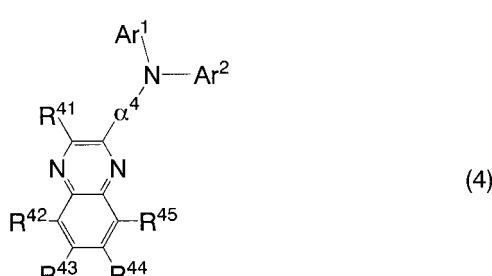
20

【0132】

よって、下記一般式(4)で表されるキノキサリン誘導体であることが好ましい。

【0133】

【化67】



30

【0134】

(式中、Ar¹～Ar²は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基、または置換もしくは無置換のターフェニル基のいずれかを表し、Ar¹～Ar²は、結合していても良い。⁴は、フェニレン基、またはビフェニル-ジイル基のいずれかを表す。R⁴¹～R⁴⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

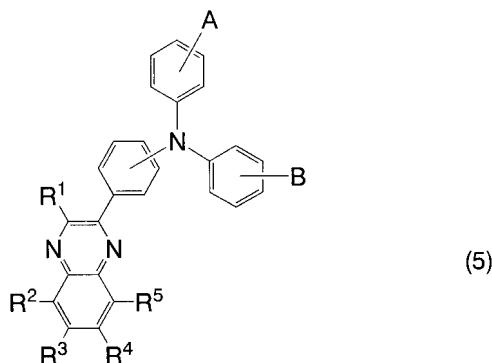
40

【0135】

また、本発明の一は、一般式(5)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0136】

【化68】



10

【0137】

(式中、AおよびBは、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素またはフェニル基を表し、R¹～R⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

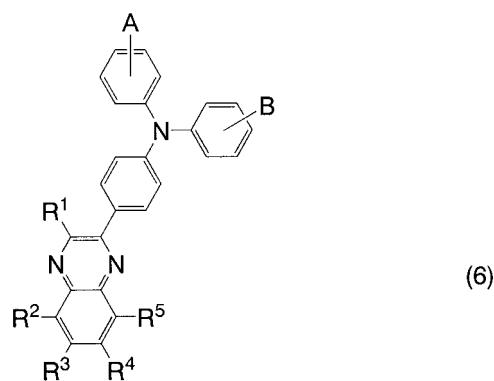
【0138】

また、本発明の一は、一般式(6)で表されるキノキサリン誘導体である。

【0139】

【化69】

20



30

【0140】

(式中、AおよびBは、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素またはフェニル基を表し、R¹～R⁵は、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、または炭素数1～4のアルキル基、または置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

【0141】

また、上記一般式(6)において、合成の点から、R²～R⁵は、水素原子であることが好ましい。

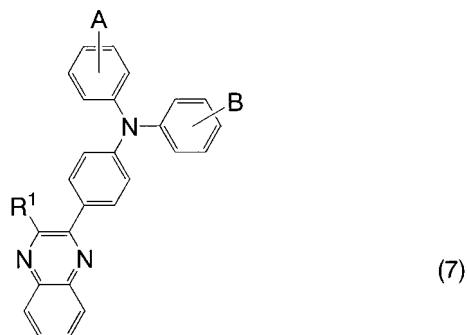
【0142】

40

よって、一般式(7)で表されるキノキサリン誘導体であることが好ましい。

【0143】

【化70】



10

【0144】

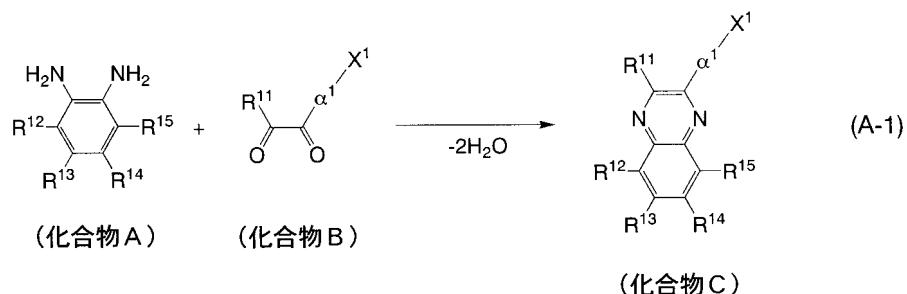
(式中、AおよびBは、それぞれ同一でも異なっていてもよく、水素またはフェニル基を表し、R¹は、置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のビフェニル基のいずれかを表す。)

【0145】

本発明のキノキサリン誘導体の合成方法としては、種々の反応の適用が可能である。例えば、下記の反応スキーム(A-1)および(A-2)に示す合成反応を行うことによって製造することができる。

【0146】

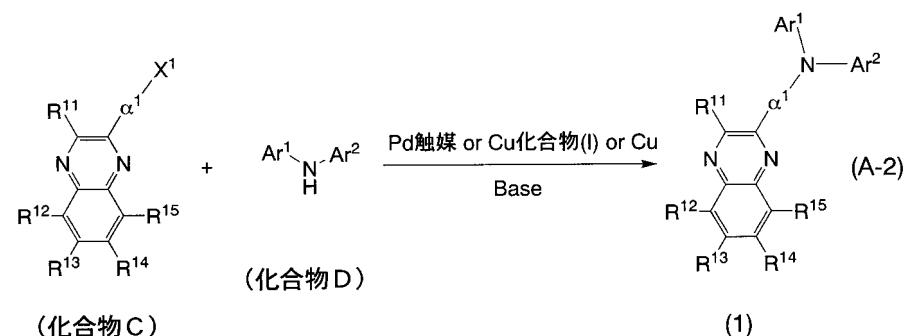
【化71】



20

【0147】

【化72】



30

(化合物C)

40

【0148】

まず、ハロゲン原子X¹で置換されたジケトン化合物(化合物B)と1、2-ジアミノベンゼンを骨格に含む化合物(化合物A)との縮合反応によってキノキサリン骨格を形成する。ハロゲン原子X¹としては臭素、ヨウ素、塩素が挙げられるが、取扱の容易さ、適度な反応性を考慮すると臭素またはヨウ素が好ましい。

【0149】

得られるハロゲン化アリールで置換されたキノキサリン化合物(化合物C)に対し、塩基存在下、1当量のジアリールアミン(Ar¹-NH-Ar²)(化合物D)をパラジウム触媒、あるいは一価の銅等の金属化合物、あるいは銅等の金属を用いてカップリングす

50

ることで、目的とする本発明のキノキサリン誘導体を合成することができる。塩基は炭酸カリウム、炭酸ナトリウムなどの無機塩基や、金属アルコキシドなどの有機塩基などを用いることができる。パラジウム触媒としては酢酸パラジウム(II)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)などを用いることができる。また、溶媒としては、トルエン、キシレン、ベンゼンなどを用いることができる。

【0150】

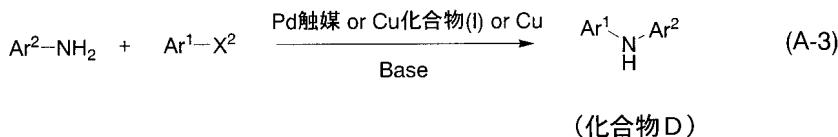
なお、上記スキーム中のジアリールアミン($\text{Ar}^1 - \text{NH} - \text{Ar}^2$) (化合物D)は、例えば以下のようなスキームで合成することができる。

【0151】

アリールアミン化合物($\text{Ar}^2 - \text{NH}_2$)とハロゲン化アリール($\text{Ar}^1 - \text{X}^2$)をパラジウム触媒、あるいは一価の銅等の金属化合物、あるいは銅等の金属を用いてカップリングすることで、ジアリールアミン($\text{Ar}^1 - \text{NH} - \text{Ar}^2$) (化合物D)を合成することができる(合成スキーム(A-3))。この反応において、溶媒としては、トルエン、キシレン、ベンゼンなどを用いることができる。

【0152】

【化73】



10

20

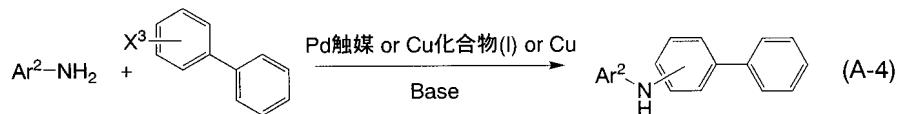
【0153】

次に、 Ar^1 がビフェニル基の場合、2位または3位または4位がハロゲン(X^3)で置換されたハロゲン置換ビフェニルに対し、塩基存在下、1当量のアリールアミン($\text{Ar}^2 - \text{NH}_2$)をパラジウム触媒、あるいは一価の銅等の金属化合物、あるいは銅等の金属を用いてカップリングすることで、目的とするアリールアミン($\text{Ar}^1 - \text{NH} - \text{Ar}^2$; Ar^1 はビフェニル基)を得ることができる(合成スキーム(A-4))。塩基は炭酸カリウム、炭酸ナトリウムなどの無機塩基や、金属アルコキシドなどの有機塩基などを用いることができる。パラジウム触媒としては酢酸パラジウム(II)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)などを用いることができる。また、溶媒としては、トルエン、キシレン、ベンゼンなどを用いることができる。

30

【0154】

【化74】



【0155】

また、 Ar^1 がビフェニル基で、かつ Ar^2 もビフェニル基の場合、二つのフェニル基がいずれもハロゲン(X^5 および X^4)で置換されたジフェニルアミンに対し、塩基存在下、2当量のフェニルボロン酸またはフェニルホウ素化合物(例えば、2-フェニル-4,4',5,5'-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロランなど)をパラジウム触媒を用いてカップリングすることで、目的とするアリールアミン($\text{Ar}^1 - \text{NH} - \text{Ar}^2$; Ar^1 、 Ar^2 共にビフェニル基)を得ることもできる(合成スキーム(A-5))。塩基は炭酸カリウム、炭酸ナトリウムなどの無機塩基や、金属アルコキシドなどの有機塩基などを用いることができる。パラジウム触媒としては酢酸パラジウム(II)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)などを用いることができる。また、溶媒としては、エタノールなどのアルコール、アルコールとトルエンあるいは、アルコールとキシレン、アルコールとベンゼンなどの混合溶媒、エチレングリコールジエチルエーテル、

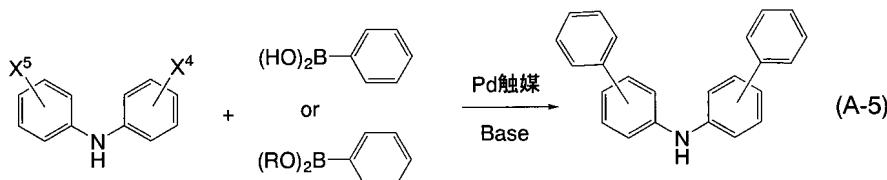
40

50

エチレングリコールジメチルエーテルなどのエーテル溶媒を用いることができる。この方法の場合、人体に有害な物質である4-アミノビフェニルを用いることなく、N,N-ジ(4-ビフェニル)アミンを合成することができるというメリットがある。

【0156】

【化75】



【0157】

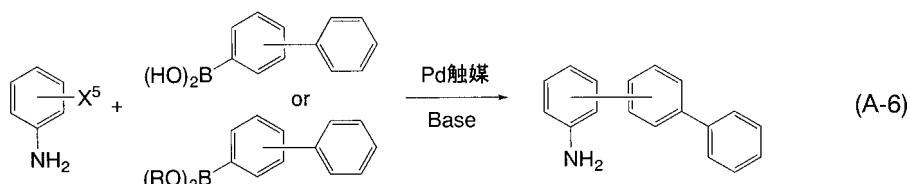
また、 Ar^1 がターフェニル基であるアリールアミン ($Ar^1-NH-Ar^2$) を合成する場合、まず、2位または3位または4位がハロゲン (X^5) で置換されたアニリンに對し、塩基存在下、2位または3位または4位がフェニル基で置換された1当量のフェニルボロン酸またはフェニルホウ素化合物をパラジウム触媒を用いてカップリングすることで、置換位置の異なる種々のターフェニルアミンを合成できる(合成スキーム(A-6))。塩基は炭酸カリウム、炭酸ナトリウムなどの無機塩基や、金属アルコキシドなどの有機塩基などを用いることができる。また、パラジウム触媒としては酢酸パラジウム(II)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)などを用いることができる。また、溶媒としては、エタノールなどのアルコール、アルコールとトルエンあるいは、アルコールとキシレン、アルコールとベンゼンなどの混合溶媒、エチレングリコールジエチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテルなどのエーテル溶媒を用いることができる。

【0158】

そして、ハロゲンで置換されたアリール (Ar^2-X^6) に対し、塩基存在下、上記で得られたターフェニルアミン1当量をパラジウム触媒、あるいは一価の銅等の金属化合物、あるいは銅等の金属を用いてカップリングすることで、目的とするアリールアミン ($Ar^1-NH-Ar^2$; Ar^1 はターフェニル基) を得ることができる(合成スキーム(A-7))。塩基は炭酸カリウム、炭酸ナトリウムなどの無機塩基や、金属アルコキシドなどの有機塩基などを用いることができる。パラジウム触媒としては酢酸パラジウム(II)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)などを用いることができる。また、溶媒としては、トルエン、キシレン、ベンゼンなどを用いることができる。

【0159】

【化76】



10



30

【0160】

また、 Ar^1 がターフェニル基の場合で、かつターフェニル基の中心のベンゼン環がア

50

ミノ基で置換されている場合は、まず2箇所がハロゲン(X⁷)で置換されたアニリンに対し、塩基存在下、2当量のフェニルボロン酸またはフェニルホウ素化合物をパラジウム触媒を用いてカップリングすることで、ターフェニル基の中心のベンゼン環がアミノ基で置換されたターフェニルアミンを合成する(合成スキーム(A-8))。塩基は炭酸カリウム、炭酸ナトリウムなどの無機塩基や、金属アルコキシドなどの有機塩基などを用いることができる。また、パラジウム触媒としては酢酸パラジウム(II)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)などを用いることができる。また、溶媒としては、エタノールなどのアルコール、アルコールとトルエンあるいは、アルコールとキシレン、アルコールとベンゼンなどの混合溶媒、エチレンギリコールジエチルエーテル、エチレンギリコールジメチルエーテルなどのエーテル溶媒を用いることができる。

10

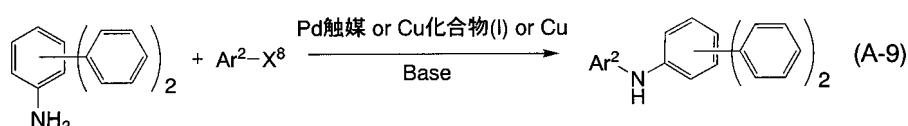
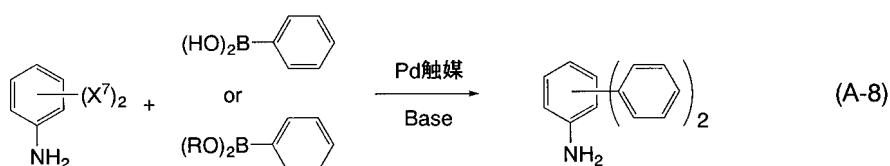
【0161】

そして、ハロゲン置換されたアリール(Ar²-X⁸)に対し、塩基存在下、得られたターフェニルアミン1当量をパラジウム触媒、あるいは一価の銅等の金属化合物、あるいは銅等の金属を用いてカップリングすることで、目的とするアリールアミン(Ar¹-NH-Ar²; Ar¹はターフェニル基)を得ることができる(合成スキーム(A-9))。塩基は炭酸カリウム、炭酸ナトリウムなどの無機塩基や、金属アルコキシドなどの有機塩基などを用いることができる。パラジウム触媒としては酢酸パラジウム(II)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)などを用いることができる。また、溶媒としては、トルエン、キシレン、ベンゼンなどを用いることができる。

20

【0162】

【化77】



30

【0163】

本発明のキノキサリン誘導体は、バイポーラ性であり、電子輸送性および正孔輸送性の双方に優れている。よって、本発明のキノキサリン誘導体をエレクトロニクスデバイスに用いることにより、良好な電気特性を得ることができる。また、本発明のキノキサリン誘導体は電気化学的な酸化や還元に対して安定であるため、本発明のキノキサリン誘導体をエレクトロニクスデバイスに用いることにより、長寿命なエレクトロニクスデバイスを得ることができる。

40

【0164】

(実施の形態2)

本発明のキノキサリン誘導体を用いた発光素子の一態様について図1(A)を用いて以下に説明する。

【0165】

本発明の発光素子は、一対の電極間に複数の層を有する。本形態において、発光素子は、第1の電極102と、第2の電極104と、第1の電極102と第2の電極との間に設けられたEL層とから構成されている。なお、本形態では第1の電極102は陽極として機能し、第2の電極104は陰極として機能するものとして、以下説明をする。つまり、第1の電極102の方が第2の電極104よりも電位が高くなるように、第1の電極10

50

2と第2の電極104に電圧を印加したときに、発光が得られるものとして、以下説明をする。

【0166】

基板101は発光素子の支持体として用いられる。基板101としては、例えばガラス、またはプラスチックなどを用いることができる。なお、発光素子の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。

【0167】

第1の電極102としては、仕事関数の大きい（具体的には4.0eV以上）金属、合金、導電性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。具体的には、例えば、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（IZO：Indium Zinc Oxide）、酸化タンクス滕及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム（IWZO）等が挙げられる。これらの導電性金属酸化物膜は、通常スパッタにより成膜されるが、ゾル-ゲル法などを応用して作製しても構わない。例えば、酸化インジウム-酸化亜鉛（IZO）は、酸化インジウムに対し1～20wt%の酸化亜鉛を加えたターゲットを用いてスパッタリング法により形成することができる。また、酸化タンクス滕及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム（IWZO）は、酸化インジウムに対し酸化タンクス滕を0.5～5wt%、酸化亜鉛を0.1～1wt%含有したターゲットを用いてスパッタリング法により形成することができる。この他、金（Au）、白金（Pt）、ニッケル（Ni）、タンクス滕（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）、または金属材料の窒化物（例えば、窒化チタン）等が挙げられる。

10

20

30

40

【0168】

EL層103は、層の積層構造については特に限定されず、電子輸送性の高い物質または正孔輸送性の高い物質、電子注入性の高い物質、正孔注入性の高い物質、バイポーラ性（電子及び正孔の輸送性の高い物質）の物質等から成る層と、実施の形態1で示した本発明のキノキサリン誘導体を含む層とを適宜組み合わせて構成すればよい。例えば、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層等を適宜組み合わせて構成することができる。本実施の形態では、EL層103は、第1の電極102の上に順に積層した正孔注入層111、正孔輸送層112、発光層113、電子輸送層114を有する構成について説明する。各層を構成する材料について以下に具体的に示す。

【0169】

正孔注入層111は、正孔注入性の高い物質を含む層である。モリブデン酸化物やバナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、タンクス滕酸化物、マンガン酸化物等を用いることができる。この他、フタロシアニン（略称：H₂Pc）や銅フタロシアニン（略称：CuPc）等のフタロシアニン系の化合物、4,4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：DPAB）、4,4'-ビス(N-{4-[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]フェニル}-N-フェニルアミノ)ビフェニル（略称：DNTPD）等の芳香族アミン化合物、或いはポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)/ポリ(スチレンスルホン酸)(PEDOT/PSS)等の高分子等によっても正孔注入層111を形成することができる。

【0170】

また、正孔注入層111として、正孔輸送性の高い物質にアクセプター性物質を含有させた複合材料を用いることができる。なお、正孔輸送性の高い物質にアクセプター性物質を含有させたものを用いることにより、電極の仕事関数に依らず電極を形成する材料を選ぶことができる。つまり、第1の電極102として仕事関数の大きい材料だけでなく、仕事関数の小さい材料を用いることができる。アクセプター性物質としては、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

50

。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、酸化タンクスチル、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。

【0171】

複合材料に用いる正孔輸送性の高い物質としては、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、芳香族炭化水素、高分子化合物（オリゴマー、デンドリマー、ポリマー等）など、種々の化合物を用いることができる。なお、複合材料に用いる有機化合物としては、正孔輸送性の高い有機化合物であることが好ましい。具体的には、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質であることが好ましい。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。以下では、複合材料に用いることのできる有機化合物を具体的に列挙する。

10

【0172】

例えば、芳香族アミン化合物としては、N, N'-ジ(p-トリル)-N, N'-ジフェニル-p-フェニレンジアミン（略称：D TD PPA）、4, 4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：D PAB）、4, 4'-ビス(N-[4-[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]フェニル]-N-フェニルアミノ)ビフェニル（略称：D NTPD）、1, 3, 5-トリス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ベンゼン（略称：D PA 3 B）等を挙げることができる。

20

【0173】

複合材料に用いることのできるカルバゾール誘導体としては、具体的には、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：P C z P C A 1）、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：P C z P C A 2）、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：P C z P C N 1）等を挙げることができる。

【0174】

また、複合材料に用いることのできるカルバゾール誘導体としては、他に、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-(N-カルバゾリル)フェニル-10-フェニルアントラセン（略称：CzPA）、1, 4-ビス[4-(N-カルバゾリル)フェニル]-2, 3, 5, 6-テトラフェニルベンゼン等を用いることができる。

30

【0175】

また、複合材料に用いることのできる芳香族炭化水素としては、例えば、2-tert-ブチル-9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン（略称：t-BuDNA）、2-tert-ブチル-9, 10-ジ(1-ナフチル)アントラセン、9, 10-ビス(3, 5-ジフェニルフェニル)アントラセン（略称：DPPA）、2-tert-ブチル-9, 10-ビス(4-フェニルフェニル)アントラセン（略称：t-BuDBA）、9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン（略称：DNA）、9, 10-ジフェニルアントラセン（略称：DPAnth）、2-tert-ブチルアントラセン（略称：t-BuAnth）、9, 10-ビス(4-メチル-1-ナフチル)アントラセン（略称：DMNA）、2-tert-ブチル-9, 10-ビス[2-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン、9, 10-ビス[2-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン、2, 3, 6, 7-テトラメチル-9, 10-ジ(1-ナフチル)アントラセン、2, 3, 6, 7-テトラメチル-9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン、9, 9'-ビアントリル、10, 10'-ジフェニル-9, 9'-ビアントリル、10, 10'-ビス(2-フェニルフェニル)-9, 9'-ビアントリル、10, 10'-ビス[(2, 3, 4, 5, 6-ペンタフェニル)フェニル]-9, 9'-ビアントリル、アントラセン、ルブレン、

40

50

ペリレン、2,5,8,11-テトラ(tert-ブチル)ペリレン等が挙げられる。また、この他、ペンタセン、コロネン等も用いることができる。このように、 1×10^{-6} cm² / Vs 以上の正孔移動度を有し、炭素数14~42である芳香族炭化水素を用いることがより好ましい。

【0176】

なお、複合材料に用いることのできる芳香族炭化水素は、ビニル骨格を有していてもよい。ビニル基を有している芳香族炭化水素としては、例えば、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル(略称: DPVBi)、9,10-ビス[4-(2,2-ジフェニルビニル)フェニル]アントラセン(略称: DPVPA)等が挙げられる。

【0177】

また、ポリ(N-ビニルカルバゾール)(略称: PVK)やポリ(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)ベンジン](略称: Poly-TPD)等の高分子化合物を用いることができる。

【0178】

正孔輸送層112は、正孔輸送性の高い物質を含む層である。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)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(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]-1,1'-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} cm² / 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。なお、正孔輸送性の高い物質を含む層は、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。

【0179】

また、正孔輸送層112として、ポリ(N-ビニルカルバゾール)(略称: PVK)やポリ(4-ビニルトリフェニルアミン)(略称: PVTPA)等の高分子化合物を用いることができる。

【0180】

発光層113は、発光性の物質を含む層である。本実施の形態では、発光層113は実施の形態1で示した本発明のキノキサリン誘導体を含む。本発明のキノキサリン誘導体は、青~緑色の発光を示すため、発光性物質として発光素子に好適に用いることができる。

【0181】

電子輸送層114は、電子輸送性の高い物質を含む層である。例えば、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(略称: Alq)、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)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(4-フェニルフェノラト)アルミニウム(略称: 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からなる層である。また、この他ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンズオキサゾラト]亜鉛(略称: 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、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(略称: PBD)や、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

10

20

30

40

50

- 7) 、 3 - (4 - ビフェニリル) - 4 - フェニル - 5 - (4 - t e r t - ブチルフェニル) - 1 , 2 , 4 - トリアゾール (略称 : T A Z) 、 バソフェナントロリン (略称 : B P h e n) 、 バソキュプロイン (略称 : 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物質であれば、上記以外の物質を電子輸送層として用いても構わない。また、電子輸送層は、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。

【 0 1 8 2 】

また、電子注入層を設けてもよい。電子注入層としては、フッ化リチウム (L i F) 、フッ化セシウム (C s F) 、フッ化カルシウム (C a F₂) 等のようなアルカリ金属又はアルカリ土類金属又はそれらの化合物を用いることができる。例えば、電子輸送性を有する物質からなる層中にアルカリ金属又はアルカリ土類金属又はそれらの化合物を含有させたもの、例えば A l q 中にマグネシウム (M g) を含有させたもの等を用いることができる。なお、電子注入層として、電子輸送性を有する物質からなる層中にアルカリ金属又はアルカリ土類金属を含有させたものを用いることにより、第 2 の電極 1 0 4 からの電子注入が効率良く行われるためより好ましい。

【 0 1 8 3 】

第 2 の電極 1 0 4 を形成する物質としては、仕事関数の小さい (具体的には 3 . 8 e V 以下) 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。このような陰極材料の具体例としては、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 (L i) やセシウム (C s) 等のアルカリ金属、およびマグネシウム (M g) 、カルシウム (C a) 、ストロンチウム (S r) 等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金 (M g A g 、 A l L i) 、ユウロピウム (E u) 、イッテルビウム (Y b) 等の希土類金属およびこれらを含む合金等が挙げられる。しかしながら、第 2 の電極 1 0 4 と電子輸送層との間に、電子注入層を設けることにより、仕事関数の大小に関わらず、 A l 、 A g 、 I T O 、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム - 酸化スズ等様々な導電性材料を第 2 の電極 1 0 4 として用いることができる。これら導電性材料は、スパッタリング法やインクジェット法、スピンドル法等を用いて成膜することが可能である。

【 0 1 8 4 】

また、 E L 層 1 0 3 の形成方法としては、乾式法、湿式法を問わず、種々の方法を用いることができる。例えば、真空蒸着法、インクジェット法またはスピンドル法など用いても構わない。また各電極または各層ごとに異なる成膜方法を用いて形成しても構わない。

【 0 1 8 5 】

電極についても、ゾル - ゲル法を用いて湿式法で形成しても良いし、金属材料のペーストを用いて湿式法で形成してもよい。また、スパッタリング法や真空蒸着法などの乾式法を用いて形成しても良い。

【 0 1 8 6 】

以上のような構成を有する本発明の発光素子は、第 1 の電極 1 0 2 と第 2 の電極 1 0 4 との間に生じた電位差により電流が流れ、発光性の高い物質を含む層である発光層 1 1 3 において正孔と電子とが再結合し、発光するものである。つまり発光層 1 1 3 に発光領域が形成されるような構成となっている。

【 0 1 8 7 】

発光は、第 1 の電極 1 0 2 または第 2 の電極 1 0 4 のいずれか一方または両方を通って外部に取り出される。従って、第 1 の電極 1 0 2 または第 2 の電極 1 0 4 のいずれか一方または両方は、透光性を有する電極で成る。第 1 の電極 1 0 2 のみが透光性を有する電極である場合、図 1 (A) に示すように、発光は第 1 の電極 1 0 2 を通って基板側から取り出される。また、第 2 の電極 1 0 4 のみが透光性を有する電極である場合、図 1 (B) に示すように、発光は第 2 の電極 1 0 4 を通って基板と逆側から取り出される。第 1 の電極

10

20

30

40

50

102および第2の電極104がいずれも透光性を有する電極である場合、図1(C)に示すように、発光は第1の電極102および第2の電極104を通って、基板側および基板と逆側の両方から取り出される。

【0188】

なお第1の電極102と第2の電極104との間に設けられる層の構成は、上記のものには限定されない。発光領域と金属とが近接することによって生じる消光が抑制されるように、第1の電極102および第2の電極104から離れた部位に正孔と電子とが再結合する発光領域を設けた構成であれば、上記以外のものでもよい。

【0189】

つまり、層の積層構造については特に限定されず、電子輸送性の高い物質または正孔輸送性の高い物質、電子注入性の高い物質、正孔注入性の高い物質、バイポーラ性（電子及び正孔の輸送性の高い物質）の物質等から成る層を、本発明のキノキサリン誘導体と自由に組み合わせて構成すればよい。

【0190】

図2に示す発光素子は、基板301上に、陰極として機能する第1の電極302、電子輸送層311、発光層312、正孔輸送層313、正孔注入層314、陽極として機能する第2の電極304とが順に積層された構成となっている。

【0191】

本実施の形態においては、ガラス、プラスチックなどからなる基板上に発光素子を作製している。一基板上にこのような発光素子を複数作製することで、パッシブマトリクス型の発光装置を作製することができる。また、ガラス、プラスチックなどからなる基板上に、例えば薄膜トランジスタ(TFT)を形成し、TFTと電気的に接続された電極上に発光素子を作製してもよい。これにより、TFTによって発光素子の駆動を制御するアクティブマトリクス型の発光装置を作製できる。なお、TFTの構造は、特に限定されない。スタガ型のTFTでもよいし逆スタガ型のTFTでもよい。また、TFTに用いる半導体の結晶性についても特に限定されず、非晶質半導体を用いてもよいし、結晶性半導体を用いてもよい。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、若しくはN型のTFTまたはP型のTFTのいずれか一方からのみなるものであってもよい。

【0192】

本発明のキノキサリン誘導体は、バイポーラ性を有し、また発光性を有する材料であるため、本実施の形態に示すように、他の発光性物質を含有することなく発光層として用いることが可能である。

【0193】

また、バイポーラ性であるため、積層した膜の界面に発光領域が偏りにくく、エキサイプレックス等の相互作用に起因した発光スペクトルの変化や、発光効率の低下が少ない良好な特性を有する発光素子を作製できる。また、発光効率の高い発光素子を得ることができる。

【0194】

また、成膜中に含有される微結晶成分が非常に少なく、成膜した膜に微結晶成分が少なく、アモルファス状態の膜を得ることができる。つまり、膜質がよいため、電界集中による絶縁破壊などの素子不良の少ない良好な発光素子を作製することができる。

【0195】

また、本発明のキノキサリン誘導体は、バイポーラ性であり、キャリア輸送性（電子輸送性および正孔輸送性）に優れた材料であるため、発光素子に用いることで、発光素子の駆動電圧を低減することができ、消費電力の低減に繋がる。

【0196】

また、本発明のキノキサリン誘導体は、酸化反応および引き続く還元反応、還元反応および引き続く酸化反応を繰り返しても安定である。つまり、電気化学的に安定である。よって、本発明のキノキサリン誘導体を発光素子に用いることにより、長寿命な発光素子を

10

20

30

40

50

得ることができる。

【0197】

(実施の形態3)

本実施の形態では、実施の形態2で示した構成と異なる構成の発光素子について説明する。

【0198】

実施の形態2で示した発光層113を、本発明のキノキサリン誘導体を他の物質に分散させた構成とすることで、本発明のキノキサリン誘導体からの発光を得ることができる。本発明のキノキサリン誘導体は青～青緑色の発光を示すため、青～青緑色の発光を示す発光素子を得ることができる。

10

【0199】

ここで、本発明のキノキサリン誘導体を分散させる物質としては、種々の材料を用いることができ、実施の形態2で述べた正孔輸送の高い物質や電子輸送性の高い物質の他、4,4'-ジ(4-カルバゾリル)-ビフェニル(略称:CBP)や、2,2',2''-(1,3,5-ベンゼントリイル)-トリス[1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール](略称:TPBI)、9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:DNA)、2-tert-ブチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:t-BuDNA)などが挙げられる。

【0200】

本発明のキノキサリン誘導体は、バイポーラ性であり、キャリア輸送性(電子輸送性および正孔輸送性)に優れた材料であるため、発光素子に用いることで、発光素子の駆動電圧を低減することができ、消費電力の低減に繋がる。

20

【0201】

また、本発明のキノキサリン誘導体は、酸化反応および引き続く還元反応、還元反応および引き続く酸化反応を繰り返しても安定である。つまり、電気化学的に安定である。よって、本発明のキノキサリン誘導体を発光素子に用いることにより、長寿命な発光素子を得ることができる。

【0202】

なお、発光層113以外は、実施の形態2に示した構成を適宜用いることができる。

【0203】

(実施の形態4)

本実施の形態では、実施の形態2および実施の形態3で示した構成と異なる構成の発光素子について説明する。

30

【0204】

実施の形態2で示した発光層113を、本発明のキノキサリン誘導体に発光性の物質を分散させた構成とすることで、発光性の物質からの発光を得ることができる。

【0205】

本発明のキノキサリン誘導体はバイポーラ性を有し、また成膜中に含有される微結晶成分が非常に少なく膜質がよいため、他の発光性物質を分散させる材料として好適に用いることができる。

40

【0206】

本発明のキノキサリン誘導体を他の発光性物質を分散させる材料として用いる場合、発光性物質に起因した発光色を得ることができる。また、本発明のキノキサリン誘導体に起因した発光色と、キノキサリン誘導体中に分散されている発光性物質に起因した発光色との混色の発光色を得ることもできる。

【0207】

ここで、本発明のキノキサリン誘導体に分散させる発光性物質としては、種々の材料を用いることができる。具体的には、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(略称:DCM1)、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(ジュロリジン-4-イル-ビニル)-4H-ピラン(略称:DC

50

M 2) 、 N , N - ジメチルキナクリドン (略称 : D M Q d) 、 9 , 1 0 - ジフェニルアントラセン (略称 : D P A) 、 5 , 1 2 - ジフェニルテトラセン (略称 : D P T) 、 クマリン 6 、 ペリレン、 ルブレンなどの蛍光を発光する蛍光発光性物質を用いることができる。また、 ビス (2 - フェニルベンゾチアゾラト - N , C ² ') 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)) 、 トリス (2 - フェニルキノリナト - N , C 2 ') イリジウム (I I I) (略称 : I r (p q) ₃) 、 ビス (2 - フェニルキノリナト - N , C 2 ') イリジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称 : I r (p q) ₂ (a c a c)) 、 ビス [2 - (2 ' - ベンゾ [4 , 5 -] チエニル) ピリジナト - N , C ³ '] 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 , C 2 ') 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)) 、 2 , 3 , 7 , 8 , 1 2 , 1 3 , 1 7 , 1 8 - オクタエチル - 2 1 H , 2 3 H - ボルフィリン白金 (I I) (略称 : P t O E P) などの燐光を発光する燐光発光性物質を用いることができる。分散させる発光物質として、燐光発光性物質を用いる場合には、燐光性発光物質の発光スペクトルのピークが 5 6 0 n m 以上 7 0 0 n m 以下であることが好ましい。また、蛍光発光性物質を用いる場合には、発光スペクトルのピークが 5 0 0 n m 以上 7 0 0 n m 以下であることが好ましい。さらに好ましくは、 5 0 0 n m 以上 6 0 0 n m 以下であることが好ましい。

【 0 2 0 8 】

本発明のキノキサリン誘導体は、バイポーラ性であり、キャリア輸送性 (電子輸送性および正孔輸送性) に優れた材料であるため、本発明のキノキサリン誘導体を用いることで、発光素子の駆動電圧を低減することができる。

【 0 2 0 9 】

また、本発明のキノキサリン誘導体は、バイポーラ性であるため、積層した膜の界面に発光領域が偏りにくく、エキサイプレックス等の相互作用に起因した発光スペクトルの変化や、発光効率の低下が少ない良好な特性を有する発光素子を作製できる。

【 0 2 1 0 】

また、本発明のキノキサリン誘導体は、バイポーラ性であるため、積層した膜の界面に発光領域が偏りにくい。そのため、燐光を発光する燐光発光性物質を用いた場合には、 T - T 消滅 (アニヒレイション) を防ぐことができる。よって、発光効率の高い発光素子を得ることができる。

【 0 2 1 1 】

また、本発明のキノキサリン誘導体は、酸化反応および引き続く還元反応、還元反応および引き続く酸化反応を繰り返しても安定である。つまり、電気化学的に安定である。よって、本発明のキノキサリン誘導体を発光素子に用いることにより、長寿命の発光素子を得ることができる。

【 0 2 1 2 】

なお、発光層 1 1 3 以外は、実施の形態 2 に示した構成を適宜用いることができる。

【 0 2 1 3 】

(実施の形態 5)

本実施の形態は、本発明に係る複数の発光ユニットを積層した構成の発光素子 (以下、積層型素子という) の態様について、図 3 を参照して説明する。この発光素子は、第 1 の電極と第 2 の電極との間に、複数の発光ユニットを有する積層型発光素子である。発光ユニットとしては、実施の形態 2 で示した E L 層 1 0 3 と同様な構成を用いることができる。つまり、実施の形態 2 で示した発光素子は、 1 つの発光ユニットを有する発光素子であり、本実施の形態では、複数の発光ユニットを有する発光素子について説明する。

【 0 2 1 4 】

図 3 において、第 1 の電極 5 0 1 と第 2 の電極 5 0 2 との間には、第 1 の発光ユニット 5 1 1 と第 2 の発光ユニット 5 1 2 が積層されており、第 1 の発光ユニット 5 1 1 と第 2 の

10

20

30

40

50

発光ユニット 512 との間には電荷発生層 513 が設けられている。第 1 の電極 501 と第 2 の電極 502 は実施の形態 2 と同様なものを適用することができる。また、第 1 の発光ユニット 511 と第 2 の発光ユニット 512 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 2 ~ 実施の形態 4 と同様なものを適用することができる。

【0215】

電荷発生層 513 には、有機化合物と金属酸化物の複合材料が含まれている。この有機化合物と金属酸化物の複合材料は、実施の形態 2 で示した複合材料であり、有機化合物とバナジウム酸化物やモリブデン酸化物やタンゲステン酸化物等の金属酸化物を含む。有機化合物としては、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、芳香族炭化水素、高分子化合物（オリゴマー、デンドリマー、ポリマー等）など、種々の化合物を用いることができる。なお、有機化合物としては、正孔輸送性有機化合物として正孔移動度が $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上であるものを適用することが好ましい。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。有機化合物と金属酸化物の複合体は、キャリア注入性、キャリア輸送性に優れているため、低電圧駆動、低電流駆動を実現することができる。

10

【0216】

なお、電荷発生層 513 は、有機化合物と金属酸化物の複合材料を含む層と他の材料により構成される層を組み合わせて形成してもよい。例えば、有機化合物と金属酸化物の複合材料を含む層と、電子供与性物質の中から選ばれた一の化合物と電子輸送性の高い化合物とを含む層とを組み合わせて形成してもよい。また、有機化合物と金属酸化物の複合材料を含む層と、透明導電膜とを組み合わせて形成してもよい。

20

【0217】

いずれにしても、第 1 の発光ユニット 511 と第 2 の発光ユニット 512 に挟まれる電荷発生層 513 は、第 1 の電極 501 と第 2 の電極 502 に電圧を印加したときに、一方の発光ユニットに電子を注入し、他方の発光ユニットに正孔を注入するものであれば良い。例えば、図 3 において、第 1 の電極の電位の方が第 2 の電極の電位よりも高くなるように電圧を印加した場合、電荷発生層 513 は、第 1 の発光ユニット 511 に電子を注入し、第 2 の発光ユニット 512 に正孔を注入するものであればよい。

【0218】

本実施の形態では、2つの発光ユニットを有する発光素子について説明したが、同様に、3つ以上の発光ユニット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発光ユニットを電荷発生層で仕切って配置することで、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り、その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くい発光装置を実現することができる。

30

【0219】

また、それぞれの発光ユニット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つの発光ユニットを有する発光素子において、第 1 の発光ユニットの発光色と第 2 の発光ユニット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を混合すると、白色発光を得ることができる。また、3つの発光ユニットを有する発光素子の場合でも同様であり、例えば、第 1 の発光ユニットの発光色が赤色であり、第 2 の発光ユニットの発光色が緑色であり、第 3 の発光ユニット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。

40

【0220】

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。

【0221】

（実施の形態 6）

50

本実施の形態では、本発明のキノキサリン誘導体を有機半導体素子の一種である縦型トランジスタ（S I T）の活性層として用いる形態を例示する。

【0222】

素子の構造としては、図4に示すように、本発明のキノキサリン誘導体を含む薄膜状の活性層1202をソース電極1201およびドレイン電極1203で挟み、ゲート電極1204が活性層1202に埋め込まれた構造を有する。ゲート電極1204は、ゲート電圧を印加するための手段に電気的に接続されており、ソース電極1201およびドレイン電極1203は、ソース-ドレイン間の電圧を制御するための手段に電気的に接続されている。

【0223】

このような素子構造において、ゲート電圧を印加しない状態においてソース-ドレイン間に電圧を印加すると、電流が流れる（ON状態となる）。そして、その状態でゲート電圧を印加するとゲート電極1204周辺に空乏層が発生し、電流が流れなくなる（OFF状態となる）。以上の機構により、トランジスタとして動作する。

【0224】

縦型トランジスタにおいては、発光素子と同様、キャリア輸送性と良好な膜質を兼ね備えた材料が活性層に求められるが、本発明のキノキサリン誘導体はその条件を十分に満たしており、有用である。

【0225】

（実施の形態7）

本実施の形態では、本発明のキノキサリン誘導体を用いて作製された発光装置について説明する。

【0226】

本実施の形態では、本発明のキノキサリン誘導体を用いて作製された発光装置について図5を用いて説明する。なお、図5（A）は、発光装置を示す上面図、図5（B）は図5（A）をA-A'およびB-B'で切断した断面図である。この発光装置は、発光素子の発光を制御するものとして、点線で示された駆動回路部（ソース側駆動回路）601、画素部602、駆動回路部（ゲート側駆動回路）603を含んでいる。また、604は封止基板、605はシール材であり、シール材605で囲まれた内側は、空間607になっている。

【0227】

なお、引き回し配線608はソース側駆動回路601及びゲート側駆動回路603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FPC（フレキシブルプリントサーキット）609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。

【0228】

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610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、駆動回路部であるソース側駆動回路601と、画素部602中の一つの画素が示されている。

【0229】

なお、ソース側駆動回路601はnチャネル型TFT623とpチャネル型TFT624とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路は、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一体型を示すが、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。

【0230】

また、画素部602はスイッチング用TFT611と、電流制御用TFT612とその

10

20

30

40

50

ドレンに電気的に接続された第1の電極613とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極613の端部を覆って絶縁物614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。

【0231】

また、被覆性を良好なものとするため、絶縁物614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。例えば、絶縁物614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614の上端部のみに曲率半径(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614として、光の照射によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光の照射によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる。

10

【0232】

第1の電極613上には、EL層616、および第2の電極617がそれぞれ形成されている。ここで、陽極として機能する第1の電極613に用いる材料としては、仕事関数の大きい材料を用いることが望ましい。例えば、ITO膜、または珪素を含有したインジウム錫酸化物膜、2~20wt%の酸化亜鉛を含む酸化インジウム膜、窒化チタン膜、クロム膜、タンクステン膜、Zn膜、Pt膜などの単層膜の他、窒化チタンとアルミニウムを主成分とする膜との積層、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜との3層構造等を用いることができる。なお、積層構造とすると、配線としての抵抗も低く、良好なオーミックコンタクトがとれ、さらに陽極として機能させることができる。

20

【0233】

また、EL層616は、蒸着マスクを用いた蒸着法、インクジェット法、スピンドルコート法等の種々の方法によって形成される。EL層616は、実施の形態1で示した本発明のキノキサリン誘導体を含んでいる。また、EL層616を構成する他の材料としては、低分子化合物、または高分子化合物(オリゴマー、デンドリマーを含む)であっても良い。

【0234】

さらに、EL層616上に形成され、陰極として機能する第2の電極617に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料(Al、Mg、Li、Ca、またはこれらの合金や化合物、MgAg、MgIn、AlLi、LiF、CaF₂等)を用いることが好ましい。なお、EL層616で生じた光が第2の電極617を透過させる場合には、第2の電極617として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜(ITO、2~20wt%の酸化亜鉛を含む酸化インジウム、珪素を含有したインジウム錫酸化物、酸化亜鉛(ZnO)等)との積層を用いるのが良い。

30

【0235】

さらにシール材605で封止基板604を素子基板610と貼り合わせることにより、素子基板610、封止基板604、およびシール材605で囲まれた空間607に発光素子618が備えられた構造になっている。なお、空間607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605で充填される場合もある。

【0236】

なお、シール材605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604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)、ポリエチレン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。

40

【0237】

以上のようにして、本発明のキノキサリン誘導体を用いて作製された発光装置を得ることができる。

【0238】

本発明の発光装置は、実施の形態1で示したキノキサリン誘導体を用いているため、良好な特性を備えた発光装置を得ることができる。具体的には、消費電力の低い発光装置を

50

得ることができる。

【0239】

本発明のキノキサリン誘導体は、バイポーラ性であり、キャリア輸送性（電子輸送性および正孔輸送性）に優れた材料であるため、本発明のキノキサリン誘導体を用いることで、発光素子の駆動電圧を低減することができ、発光装置の消費電力を低減することができる。特に、発光性物質として燐光発光性物質を用いた場合、発光効率も高く、より消費電力の低減された発光装置を得ることができる。

【0240】

また、本発明のキノキサリン誘導体は、電気化学的に安定であるため、長寿命な発光装置を得ることができる。

10

【0241】

以上のように、本実施の形態では、トランジスタによって発光素子の駆動を制御するアクティブマトリクス型の発光装置について説明したが、この他、パッシブマトリクス型の発光装置であってもよい。図6に本発明を適用して作製したパッシブマトリクス型の発光装置を示す。なお、図6(A)は、発光装置を示す斜視図、図6(B)は図6(A)をX-Yで切断した断面図である。図6において、基板951上には、電極952と電極956との間にはEL層955が設けられている。電極952の端部は絶縁層953で覆われている。そして、絶縁層953上には隔壁層954が設けられている。隔壁層954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っていくような傾斜を有する。つまり、隔壁層954の短辺方向の断面は、台形状であり、底辺（絶縁層953の面方向と同様の方向を向き、絶縁層953と接する辺）の方が上辺（絶縁層953の面方向と同様の方向を向き、絶縁層953と接しない辺）よりも短い。このように、隔壁層954を設けることで、静電気等に起因した発光素子の不良を防ぐことが出来る。また、パッシブマトリクス型の発光装置においても、低駆動電圧で動作する本発明の発光素子を含むことによって、低消費電力で駆動させることができる。

20

【0242】

（実施の形態8）

本実施の形態では、実施の形態7に示す発光装置をその一部に含む本発明の電子機器について説明する。本発明の電子機器は、実施の形態1に示したキノキサリン誘導体を含み、また、消費電力の低減された表示部を有する。また、長寿命の表示部を有する。

30

【0243】

本発明のキノキサリン誘導体を用いて作製された発光素子を有する電子機器として、ビデオカメラ、デジタルカメラなどのカメラ、ゴーグル型ディスプレイ、ナビゲーションシステム、音響再生装置（カーオーディオ、オーディオコンポ等）、コンピュータ、ゲーム機器、携帯情報端末（モバイルコンピュータ、携帯電話、携帯型ゲーム機または電子書籍等）、記録媒体を備えた画像再生装置（具体的にはDigital Versatile Disc (DVD) 等の記録媒体を再生し、その画像を表示しうる表示装置を備えた装置）などが挙げられる。これらの電子機器の具体例を図7に示す。

【0244】

図7(A)は本発明に係るテレビ装置であり、筐体9101、支持台9102、表示部9103、スピーカー部9104、ビデオ入力端子9105等を含む。このテレビ装置において、表示部9103は、実施の形態2～5で説明したものと同様の発光素子をマトリクス状に配列して構成されている。当該発光素子は、低電圧駆動が可能であり、長寿命であるという特徴を有している。その発光素子で構成される表示部9103も同様の特徴を有するため、このテレビ装置は画質の劣化が少なく、低消費電力化が図られている。このような特徴により、テレビ装置において、劣化補償機能回路や電源回路を大幅に削減、若しくは縮小することができるので、筐体9101や支持台9102の小型軽量化を図ることが可能である。本発明に係るテレビ装置は、低消費電力、高画質及び小型軽量化が図られているので、それにより住環境に適合した製品を提供することができる。

40

【0245】

50

図 7 (B) は本発明に係るコンピュータであり、本体 9 2 0 1 、筐体 9 2 0 2 、表示部 9 2 0 3 、キーボード 9 2 0 4 、外部接続ポート 9 2 0 5 、ポインティングデバイス 9 2 0 6 等を含む。このコンピュータにおいて、表示部 9 2 0 3 は、実施の形態 2 ~ 5 で説明したものと同様の発光素子をマトリクス状に配列して構成されている。当該発光素子は、低電圧駆動が可能であり、長寿命であるという特徴を有している。その発光素子で構成される表示部 9 2 0 3 も同様の特徴を有するため、このコンピュータは画質の劣化が少なく、低消費電力化が図られている。このような特徴により、コンピュータにおいて、劣化補償機能回路や電源回路を大幅に削減、若しくは縮小することができる。本体 9 2 0 1 や筐体 9 2 0 2 の小型軽量化を図ることが可能である。本発明に係るコンピュータは、低消費電力、高画質及び小型軽量化が図られているので、環境に適合した製品を提供することができる。

10

【 0 2 4 6 】

図 7 (C) は本発明に係る携帯電話であり、本体 9 4 0 1 、筐体 9 4 0 2 、表示部 9 4 0 3 、音声入力部 9 4 0 4 、音声出力部 9 4 0 5 、操作キー 9 4 0 6 、外部接続ポート 9 4 0 7 、アンテナ 9 4 0 8 等を含む。この携帯電話において、表示部 9 4 0 3 は、実施の形態 2 ~ 5 で説明したものと同様の発光素子をマトリクス状に配列して構成されている。当該発光素子は、低電圧駆動が可能であり、長寿命であるという特徴を有している。その発光素子で構成される表示部 9 4 0 3 も同様の特徴を有するため、この携帯電話は画質の劣化が少なく、低消費電力化が図られている。このような特徴により、携帯電話において、劣化補償機能回路や電源回路を大幅に削減、若しくは縮小することができる。本体 9 4 0 1 や筐体 9 4 0 2 の小型軽量化を図ることが可能である。本発明に係る携帯電話は、低消費電力、高画質及び小型軽量化が図られているので、携帯に適した製品を提供することができる。

20

【 0 2 4 7 】

図 7 (D) は本発明に係るカメラであり、本体 9 5 0 1 、表示部 9 5 0 2 、筐体 9 5 0 3 、外部接続ポート 9 5 0 4 、リモコン受信部 9 5 0 5 、受像部 9 5 0 6 、バッテリー 9 5 0 7 、音声入力部 9 5 0 8 、操作キー 9 5 0 9 、接眼部 9 5 1 0 等を含む。このカメラにおいて、表示部 9 5 0 2 は、実施の形態 2 ~ 5 で説明したものと同様の発光素子をマトリクス状に配列して構成されている。当該発光素子は、低電圧駆動が可能であり、長寿命であるという特徴を有している。その発光素子で構成される表示部 9 5 0 2 も同様の特徴を有するため、このカメラは画質の劣化が少なく、低消費電力化が図られている。このような特徴により、カメラにおいて、劣化補償機能回路や電源回路を大幅に削減、若しくは縮小することができる。本体 9 5 0 1 の小型軽量化を図ることが可能である。本発明に係るカメラは、低消費電力、高画質及び小型軽量化が図られているので、携帯に適した製品を提供することができる。

30

【 0 2 4 8 】

以上の様に、本発明の発光装置の適用範囲は極めて広く、この発光装置をあらゆる分野の電子機器に適用することが可能である。本発明のキノキサリン誘導体を用いることにより、低消費電力で、長寿命な表示部を有する電子機器を提供することが可能となる。

40

【 0 2 4 9 】

また、本発明の発光装置は、照明装置として用いることもできる。本発明の発光装置を照明装置として用いる一態様を、図 8 を用いて説明する。

【 0 2 5 0 】

図 8 は、本発明の発光装置をバックライトとして用いた液晶表示装置の一例である。図 8 に示した液晶表示装置は、筐体 9 0 1 、液晶層 9 0 2 、バックライト 9 0 3 、筐体 9 0 4 を有し、液晶層 9 0 2 は、ドライバ I C 9 0 5 と接続されている。また、バックライト 9 0 3 は、本発明の発光装置が用いられおり、端子 9 0 6 により、電流が供給されている。

【 0 2 5 1 】

本発明の発光装置を液晶表示装置のバックライトとして用いることにより、消費電力の

50

低減されたバックライトが得られる。また、本発明の発光装置は、面発光の照明装置であり大面積化も可能であるため、バックライトの大面積化が可能であり、液晶表示装置の大面積化も可能になる。さらに、本発明の発光装置は薄型で低消費電力であるため、表示装置の薄型化、低消費電力化も可能となる。また、本発明の発光装置は長寿命であり、本発明の発光装置は液晶表示装置も長寿命である。

【0252】

図9は、本発明を適用した発光装置を、照明装置である電気スタンドとして用いた例である。図9に示す電気スタンドは、筐体2001と、光源2002を有し、光源2002として、本発明の発光装置が用いられている。本発明の発光装置は、高輝度の発光が可能であるため、細かい作業をする場合など、手元を明るく照らすことが可能である。

10

【0253】

図10は、本発明を適用した発光装置を、室内の照明装置3001として用いた例である。本発明の発光装置は大面積化が可能であるため、大面積の照明装置として用いることができる。また、本発明の発光装置は、薄型で低消費電力であるため、薄型化、低消費電力化の照明装置として用いることが可能となる。このように、本発明を適用した発光装置を、室内の照明装置3001として用いた部屋に、図7(A)で説明したような、本発明に係るテレビ装置を設置して公共放送や映画を鑑賞することができる。このような場合、両装置は低消費電力であるので、電気料金を心配せずに、明るい部屋で迫力のある映像を鑑賞することができる。

20

【実施例1】

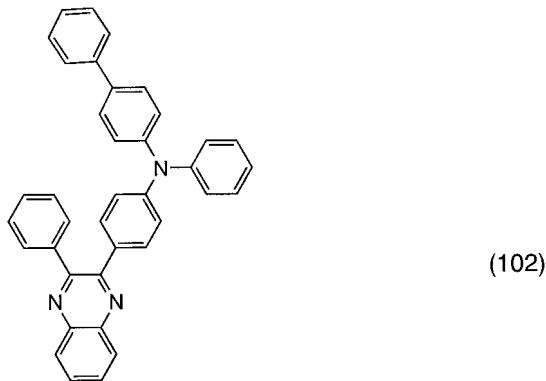
【0254】

本実施例では、下記構造式(102)で表される本発明のキノキサリン誘導体である2-[4-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称:BPA1PQ)の合成方法を具体的に説明する。

30

【0255】

【化78】



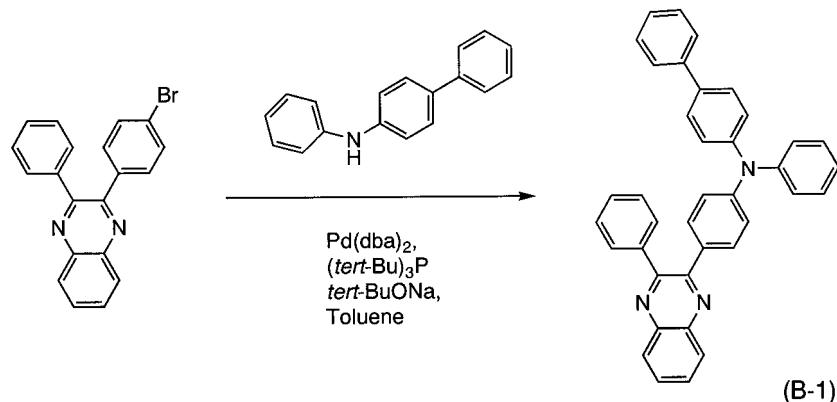
【0256】

2-[4-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称:BPA1PQ)の合成方法について説明する。2-[4-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称:BPA1PQ)の合成スキームを(B-1)に示す。

40

【0257】

【化79】



10

【0258】

2-(4-ブロモフェニル)-3-フェニルキノキサリン 1.5 g (4.2 mmol)、ナトリウム *tert*-ブトキシド 1.0 g (10 mmol)、4-フェニルジフェニルアミン 1.0 g (4.2 mmol)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム (0) 0.10 g (0.20 mmol) を 50 mL 三口フラスコに入れ、当該フラスコ内を窒素置換した。この混合物にトルエン 20 mL、トリ(*tert*-ブチル)ホスフィンの 10 wt % ヘキサン溶液 0.1 mL を加えた。この混合物を 80 で 5 時間加熱攪拌し、反応させた。反応後、反応混合物にトルエンを加え、この懸濁液をフロリジール(和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 540-00135)、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ろ過した。得られたろ液を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水の順に洗浄した。水層と有機層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。この混合物を吸引ろ過して硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮し、固体を得た。この固体をクロロホルムとヘキサンの混合溶媒で再結晶したところ、目的物の粉末状黄色固体を収量 1.2 g、収率 55 % で得た。核磁気共鳴法 (NMR) によって、この化合物が 2-[4-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称: BPA1PQ)であることを確認した。

20

【0259】

得られた黄色固体 1.2 g の昇華精製を、トレインサブリメーション法により行った。昇華精製は 7.0 Pa の減圧下、アルゴンの流量を 3 mL/min として 233 で 15 時間行った。収量 0.93 g で、回収率 78 % であった。

30

【0260】

2-[4-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称: BPA1PQ)の¹H NMR データを以下に示す。¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz): δ = 6.99 - 7.47 (m, 17 H), 7.49 (d, J = 8.8 Hz, 2 H), 7.55 - 7.63 (m, 4 H), 7.70 - 7.81 (m, 2 H) 8.10 - 8.20 (m, 2 H)。また、¹H NMR チャートを図 11 (A)、図 11 (B) に示す。なお、図 11 (B) は、図 11 (A) における 6.5 ppm ~ 8.5 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。

40

【0261】

また、BPA1PQ のトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを図 12 に示す。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、石英の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを図 12 に示した。図 12 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 324 nm、402 nm 付近に吸収が見られた。また、最大発光波長はトルエン溶液の場合では 487 nm(励起波長 401 nm)であった。

【0262】

また、BPA1PQ の薄膜の吸収スペクトルを図 13 に、BPA1PQ の薄膜の発光ス

50

ペクトルを図14に示す。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。石英基板に蒸着してサンプルを作製し、石英の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを図13に示した。図13において横軸は波長（nm）、縦軸は吸収強度（任意単位）を表す。また、図14において横軸は波長（nm）、縦軸は発光強度（任意単位）を表す。薄膜の場合では330nm、414nm付近に吸収が見られた。また、最大発光波長は薄膜の場合では513nm（励起波長414nm）であった。

【0263】

また、BPA1PQの薄膜状態におけるイオン化ポテンシャルを大気中の光電子分光法（理研計器社製、AC-2）で測定した結果、5.45eVであった。その結果、HOMO準位が-5.45eVであることがわかった。さらに、BPA1PQの薄膜の吸収スペクトルのデータを用い、直接遷移を仮定したTaucプロットから吸収端を求め、その吸収端を光学的エネルギーギャップとして見積もったところ、そのエネルギーギャップは2.69eVであった。得られたエネルギーギャップの値とHOMO準位からLUMO準位を求めたところ、-2.76eVであった。

10

【0264】

また、BPA1PQの酸化還元反応特性を測定した。酸化還元反応特性は、サイクリックボルタントリ（CV）測定によって調べた。なお測定には、電気化学アナライザー（ビー・エー・エス（株）製、型番：ALSモデル600A）を用いた。

【0265】

CV測定における溶液は、溶媒として脱水ジメチルホルムアミド（DMF）（（株）アルドリッヂ製、99.8%、カタログ番号：22705-6）を用い、支持電解質である過塩素酸テトラ-n-ブチルアンモニウム（n-Bu₄NClO₄）（（株）東京化成製、カタログ番号：T0836）を100mmol/Lの濃度となるように溶解させた。さらに測定対象であるBPA1PQを10mmol/Lの濃度となるように溶解させた。また、作用電極としては白金電極（ビー・エー・エス（株）製、PTE白金電極）を、補助電極としては白金電極（ビー・エー・エス（株）製、VC-3用Ptカウンター電極（5cm））を、参照電極としてはAg/Ag⁺電極（ビー・エー・エス（株）製、RE5非水溶媒系参照電極）をそれぞれ用いた。なお、測定は室温で行った。

20

【0266】

BPA1PQの酸化反応特性については次のようにして調べた。参照電極に対する作用電極の電位を-0.73Vから1.00Vまで変化させた後、1.00Vから-0.73Vまで変化させる走査を1サイクルとし、100サイクル測定した。また、BPA1PQの還元反応特性については次のようにして調べた。参照電極に対する作用電極の電位を-0.43Vから-2.20Vまで変化させた後、-2.20Vから-0.43Vまで変化させる走査を1サイクルとし、100サイクル測定した。なお、CV測定のスキャン速度は0.1V/sに設定した。

30

【0267】

図15にBPA1PQの酸化側のCV測定結果を、図16にBPA1PQの還元側のCV測定結果をそれぞれ示す。図15および図16において、横軸は参照電極に対する作用電極の電位（V）を表し、縦軸は作用電極と補助電極との間に流れた電流値（μA）を表す。図15から、0.69V付近（vs. Ag/Ag⁺電極）に酸化を示す電流が観測された。また、図16から、-2.04V付近（vs. Ag/Ag⁺電極）に還元を示す電流が観測された。

40

【0268】

100サイクルもの走査を繰り返しているにもかかわらず、酸化反応および還元反応において、CV曲線のピーク位置やピーク強度にあまり変化が見られない。このことから、本発明のキノキサリン誘導体は酸化還元反応の繰り返しに対して極めて安定であることが分かった。

【実施例2】

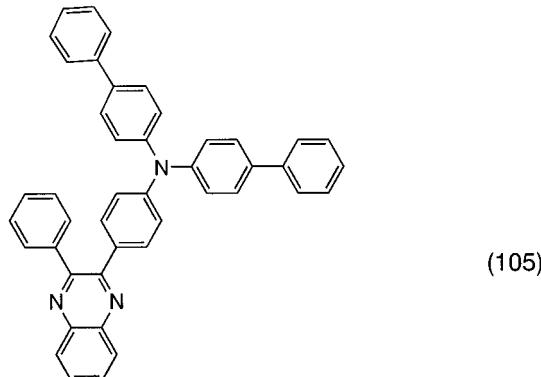
【0269】

50

本実施例では、下記構造式(105)で表される本発明のキノキサリン誘導体である2-[4-[N,N-ジ(ビフェニル-4-イル)アミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称: BBA1PQ)の合成方法を具体的に説明する。

【0270】

【化80】



10

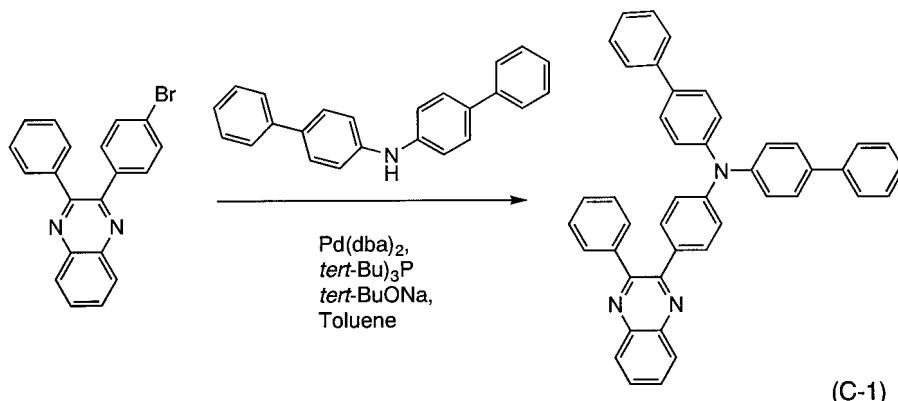
【0271】

2-[4-[N,N-ジ(ビフェニル-4-イル)アミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称: BBA1PQ)の合成方法について説明する。2-[4-[N,N-ジ(ビフェニル-4-イル)アミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称: BBA1PQ)の合成スキームを(C-1)に示す。

20

【0272】

【化81】



30

【0273】

2-(4-ブロモフェニル)-3-フェニルキノキサリン2.0g(5.5mmol)、ナトリウム*tert*-ブトキシド2.0g(21mmol)、ジ(ビフェニル-4-イル)アミン1.8g(5.5mmol)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)0.10g(0.20mmol)を50mL三口フラスコに入れ、当該フラスコ内を窒素置換した。この混合物にトルエン20mL、トリ(*tert*-ブチル)ホスフィンの10wt%ヘキサン溶液0.1mLを加えた。この混合物を80°Cで5時間加熱攪拌し、反応させた。反応後、反応混合物にトルエンを加え、この懸濁液をフロリジール(和光純薬工業株式会社、カタログ番号:540-00135)、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ろ過した。得られたろ液を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水の順に洗浄した。水層と有機層を分離し、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。この混合物を吸引ろ過して硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮し、固体を得た。この固体をクロロホルムとヘキサンの混合溶媒で再結晶したところ、目的物の粉末状黄色固体を収量2.9g、収率87%で得た。核磁気共鳴法(NMR)によって、この化合物が2-[4-[N,N-ジ(ビフェニル-4-イル)アミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称: BBA1PQ)であることを確認した。

40

50

P Q) であることを確認した。

【 0 2 7 4 】

得られた黄色固体 2 . 0 g の昇華精製をトレンインサブリメーション法により行った。昇華精製は 7 . 0 P a の減圧下、アルゴンの流量を 3 m L / m i n として 2 8 0 で 1 5 時間行った。収量 1 . 9 g で、回収率 9 5 % であった。

【 0 2 7 5 】

2 - { 4 - [N 、 N - ジ (ビフェニル - 4 - イル) アミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B B A 1 P Q) の ¹ H N M R データを以下に示す。 ¹ H N M R (C D C 1 ₃ , 3 0 0 M H z) : δ = 7 . 1 0 (d , J = 8 . 3 H z , 2 H) , 7 . 1 9 - 7 . 4 9 (m , 1 5 H) , 7 . 5 2 (d , J = 8 . 3 H z , 4 H) , 7 . 5 6 - 7 . 6 4 (m , 6 H) , 7 . 7 3 - 7 . 7 9 (m , 2 H) , 8 . 1 2 - 8 . 2 2 (m , 2 H) 。また、 ¹ H N M R チャートを図 1 7 (A) 、図 1 7 (B) に示す。なお、図 1 7 (B) は、図 1 7 (A) における 6 . 5 p p m ~ 8 . 5 p p m の範囲を拡大して表したチャートである。

【 0 2 7 6 】

また、 B B A 1 P Q のトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを図 1 8 に示す。測定には紫外可視分光光度計 (日本分光株式会社製、 V 5 5 0 型) を用いた。溶液は石英セルに入れ、石英の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを図 1 8 に示した。図 1 8 において横軸は波長 (n m) 、縦軸は強度 (任意単位) を表す。トルエン溶液の場合では 3 4 2 n m 、 4 0 5 n m 付近に吸収が見られた。また、最大発光波長はトルエン溶液の場合では 4 9 1 n m (励起波長 4 0 6 n m) であった。

【 0 2 7 7 】

また、 B B A 1 P Q の薄膜の吸収スペクトルを図 1 9 に、 B B A 1 P Q の薄膜の発光スペクトルを図 2 0 に示す。測定には紫外可視分光光度計 (日本分光株式会社製、 V 5 5 0 型) を用いた。石英基板に蒸着してサンプルを作製し、石英の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを図 1 9 に示した。図 1 9 において横軸は波長 (n m) 、縦軸は吸収強度 (任意単位) を表す。また、図 2 0 において横軸は波長 (n m) 、縦軸は発光強度 (任意単位) を表す。薄膜の場合では 3 4 6 n m 、 4 1 4 n m 付近に吸収が見られた。また、最大発光波長は薄膜の場合では 5 1 8 n m (励起波長 4 1 8 n m) であった。

【 0 2 7 8 】

また、 B B A 1 P Q の薄膜状態におけるイオン化ポテンシャルを大気中の光電子分光法 (理研計器社製、 A C - 2) で測定した結果、 5 . 4 3 e V であった。その結果、 H O M O 準位が - 5 . 4 3 e V であることがわかった。さらに、 B B A 1 P Q の薄膜の吸収スペクトルのデータを用い、直接遷移を仮定した T a u c プロットから吸収端を求め、その吸収端を光学的エネルギーギャップとして見積もったところ、そのエネルギーギャップは 2 . 6 6 e V であった。得られたエネルギーギャップの値と H O M O 準位から L U M O 準位を求めたところ、 - 2 . 7 7 e V であった。

【 0 2 7 9 】

また、 B B A 1 P Q の酸化還元反応特性を測定した。酸化還元反応特性は、サイクリックボルタノメトリ (C V) 測定によって調べた。なお測定には、電気化学アナライザー (ビー・エー・エス (株) 製、型番 : A L S モデル 6 0 0 A) を用いた。

【 0 2 8 0 】

C V 測定における溶液は、溶媒として脱水ジメチルホルムアミド (D M F) ((株) アルドリッヂ製、 9 9 . 8 % 、カタログ番号 ; 2 2 7 0 5 - 6) を用い、支持電解質である過塩素酸テトラ - n - プチルアンモニウム (n - B u ₄ N C l O ₄) ((株) 東京化成製、カタログ番号 ; T 0 8 3 6) を 1 0 0 m m o l / L の濃度となるように溶解させた。さらに測定対象である B B A 1 P Q を 1 0 m m o l / L の濃度となるように溶解させた。また、作用電極としては白金電極 (ビー・エー・エス (株) 製、 P T E 白金電極) を、補助電極としては白金電極 (ビー・エー・エス (株) 製、 V C - 3 用 P t カウンター電極 (5 c m)) を、参照電極としては A g / A g ⁺ 電極 (ビー・エー・エス (株) 製、 R E 5 非

10

20

30

40

50

水溶媒系参照電極)をそれぞれ用いた。なお、測定は室温で行った。

【0281】

BBA1PQの酸化反応特性については次のようにして調べた。参照電極に対する作用電極の電位を-0.57Vから1.00Vまで変化させた後、1.00Vから-0.57Vまで変化させる走査を1サイクルとし、100サイクル測定した。また、BBA1PQの還元反応特性については次のようにして調べた。参照電極に対する作用電極の電位を-0.40Vから-2.20Vまで変化させた後、-2.20Vから-0.40Vまで変化させる走査を1サイクルとし、100サイクル測定した。なお、CV測定のスキャン速度は0.1V/sに設定した。

【0282】

図21にBBA1PQの酸化側のCV測定結果を、図22にBBA1PQの還元側のCV測定結果をそれぞれ示す。図21および図22において、横軸は参照電極に対する作用電極の電位(V)を表し、縦軸は作用電極と補助電極との間に流れた電流値(μA)を表す。図21から、0.65V付近(vs. Ag/Ag⁺電極)に酸化を示す電流が観測された。また、図22から、-2.04V付近(vs. Ag/Ag⁺電極)に還元を示す電流が観測された。

【0283】

100サイクルもの走査を繰り返しているにもかかわらず、酸化反応および還元反応において、CV曲線のピーク位置やピーク強度にあまり変化が見られない。このことから、本発明のキノキサリン誘導体は酸化還元反応の繰り返しに対して極めて安定であることが分かった。

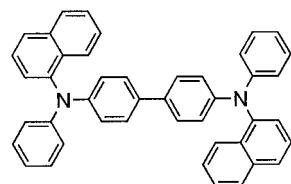
【実施例3】

【0284】

本実施例では、本発明の発光素子について、図23を用いて説明する。実施例3および実施例4で用いた材料の化学式を以下に示す。なお、すでに構造式を示した材料については省略する。

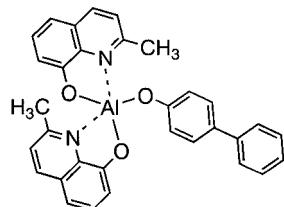
【0285】

【化 8 2】

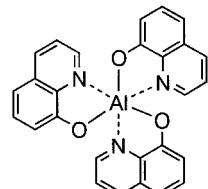


NPB

10

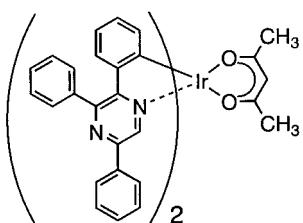
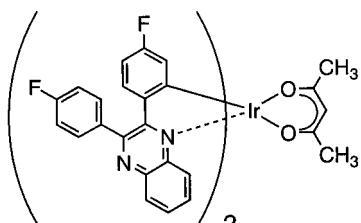


BAIq



Alq

20

Ir(tppr)₂(acac)Ir(Fdpq)₂(acac)

【0 2 8 6】

30

以下に、本実施例の発光素子の作製方法を示す。

【0 2 8 7】

(発光素子 1)

まず、ガラス基板 2101 上に、酸化珪素を含む酸化インジウム - 酸化スズをスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 2102 を形成した。なお、その膜厚は 110 nm とし、電極面積は 2 mm × 2 mm とした。

【0 2 8 8】

次に、第 1 の電極が形成された面が下方となるように、第 1 の電極が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定した。その後真空装置内を排気し、10⁻⁴ Pa 程度まで減圧した後、第 1 の電極 2102 上に、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)と酸化モリブデン(VI)とを共蒸着することにより、複合材料を含む層 2103 を形成した。その膜厚は 50 nm とし、NPB と酸化モリブデン(VI)との比率は、重量比で 4:1 (= NPB : 酸化モリブデン) となるように調節した。

【0 2 8 9】

次に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、複合材料を含む層 2103 上に 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)を 10 nm の膜厚となるように成膜し、正孔輸送層 2104 を形成した。

【0 2 9 0】

さらに、構造式(102)で表される本発明のキノキサリン誘導体である 2-[4-[

40

50

N - (ピフェニル - 4 - イル) - N - フェニルアミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B P A 1 P Q) と (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)) とを共蒸着することにより、正孔輸送層 2104 上に 30 nm の膜厚の発光層 2105 を形成した。B P A 1 P Q と I r (F d p q) ₂ (a c a c) との重量比は、 1 : 0 . 0 6 (= B P A 1 P Q : I r (F d p q) ₂ (a c a c)) となるように調節した。

【 0 2 9 1 】

その後抵抗加熱による蒸着法を用いて、発光層 2105 上にビス (2 - メチル - 8 - キノリノラト) (4 - フェニルフェノラト) アルミニウム (略称 : B A 1 q) を 10 nm の膜厚となるように成膜し、電子輸送層 2106 を形成した。

【 0 2 9 2 】

さらに、電子輸送層 2106 上に、トリス (8 - キノリノラト) アルミニウム (略称 : A 1 q) とリチウムを共蒸着することにより、50 nm の膜厚で電子注入層 2107 を形成した。ここで、A 1 q とリチウムとの重量比は、 1 : 0 . 0 1 (= A 1 q : リチウム) となるように調節した。

【 0 2 9 3 】

最後に、抵抗加熱による蒸着法を用い、電子注入層 2107 上にアルミニウムを 200 nm の膜厚となるように成膜することにより、第 2 の電極 2108 を形成することで、発光素子 1 を作製した。

【 0 2 9 4 】

発光素子 1 の電流密度 - 輝度特性を図 24 に、電圧 - 輝度特性を図 25 に、輝度 - 電流効率特性を図 26 に示す。また、1 mA の電流を流したときの発光スペクトルを図 27 に示す。

【 0 2 9 5 】

発光素子 1 は、輝度 1000 cd / m² のときの CIE 色度座標は (x = 0 . 71 , y = 0 . 29) であり、赤色の発光であった。また、輝度 1000 cd / m² のときの電流効率は 6 . 1 cd / A であり、外部量子効率は 14 % であり、高い効率を示した。また、輝度 1000 cd / m² のときの電圧は 6 . 2 V 、電流密度は、 16 . 9 mA / cm² であり、パワー効率は 3 . 11 mW であり、高いパワー効率を示した。

【 0 2 9 6 】

よって、本発明のキノキサリン誘導体を用いることにより、発光効率が高く、消費電力の低い発光素子を得ることができる。

【 実施例 4 】

【 0 2 9 7 】

本実施例では、本発明の発光素子について、図 23 を用いて説明する。以下に、本実施例の発光素子の作製方法を示す。

【 0 2 9 8 】

(発光素子 2)

まず、ガラス基板 2101 上に、酸化珪素を含む酸化インジウム - 酸化スズをスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 2102 を形成した。なお、その膜厚は 110 nm とし、電極面積は 2 mm × 2 mm とした。

【 0 2 9 9 】

次に、第 1 の電極が形成された面が下方となるように、第 1 の電極が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定した。その後真空装置内を排気し、 10⁻⁴ Pa 程度まで減圧した後、第 1 の電極 2102 上に、 4 , 4 ' - ビス [N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ] ピフェニル (略称 : N P B) と酸化モリブデン (V I) とを共蒸着することにより、複合材料を含む層 2103 を形成した。その膜厚は 50 nm とし、N P B と酸化モリブデン (V I) との比率は、重量比で 4 : 1 (= N P B : 酸化モリブデン) となるように調節した。

10

20

30

40

50

【0300】

次に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、複合材料を含む層2103上に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)を10nmの膜厚となるように成膜し、正孔輸送層2104を形成した。

【0301】

さらに、構造式(102)で表される本発明のキノキサリン誘導体である2-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称:BPA1PQ)と(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))とを共蒸着することにより、正孔輸送層2104上に30nmの膜厚の発光層2105を形成した。BPA1PQとIr(tppr)₂(acac)との重量比は、1:0.06(=BPA1PQ:Ir(tppr)₂(acac))となるように調節した。

10

【0302】

その後抵抗加熱による蒸着法を用いて、発光層2105上にビス(2-メチル-8-キノリノラト)(4-フェニルフェノラト)アルミニウム(略称:BA1q)を10nmの膜厚となるように成膜し、電子輸送層2106を形成した。

【0303】

さらに、電子輸送層2106上に、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(略称:Alq)とリチウムを共蒸着することにより、50nmの膜厚で電子注入層2107を形成した。ここで、Alqとリチウムとの重量比は、1:0.01(=Alq:リチウム)となるように調節した。

20

【0304】

最後に、抵抗加熱による蒸着法を用い、電子注入層2107上にアルミニウムを200nmの膜厚となるように成膜することにより、第2の電極2108を形成することで、発光素子2を作製した。

【0305】

(発光素子3)

発光層2105を、構造式(105)で表される本発明のキノキサリン誘導体である2-[N、N-ジ(ビフェニル-4-イル)アミノ]フェニル]-3-フェニルキノキサリン(略称:BBAlPQ)と(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))とを共蒸着することにより形成した。BBAlPQとIr(tppr)₂(acac)との重量比は、1:0.06(=BBAlPQ:Ir(tppr)₂(acac))となるように調節した。発光層2105以外は、発光素子2と同様に形成し、発光素子3を作製した。

30

【0306】

発光素子2および発光素子3の電流密度-輝度特性を図28に、電圧-輝度特性を図29に、輝度-電流効率特性を図30に示す。また、1mAの電流を流したときの発光スペクトルを図31に示す。

40

【0307】

発光素子2は、輝度890cd/m²のときのCIE色度座標は(x=0.64, y=0.36)であり、赤色の発光であった。また、輝度890cd/m²のときの電流効率は6.8cd/Aであり、外部量子効率は4.6%であり、高い効率を示した。また、輝度890cd/m²のときの電圧は4.6V、電流密度は、13.2mA/cm²であり、パワー効率は4.61m/Wであり、駆動電圧が低く、高いパワー効率を示した。

【0308】

また、発光素子3は、輝度1100cd/m²のときのCIE色度座標は(x=0.64, y=0.35)であり、赤色の発光であった。また、輝度1100cd/m²のときの電流効率は9.5cd/Aであり、外部量子効率は6.8%であり、高い効率を示した。また、輝度1100cd/m²のときの電圧は4.4V、電流密度は、11.8mA/cm²であり、駆動電圧が低く、高いパワー効率を示した。

50

cm² であり、パワー効率は 6.81 m/W であり、駆動電圧が低く、高いパワー効率を示した。

【0309】

よって、本発明のキノキサリン誘導体を用いることにより、発光効率が高く、消費電力の低い発光素子を得ることができる。

【実施例 5】

【0310】

本実施例では、他の実施例で用いた材料について説明する。

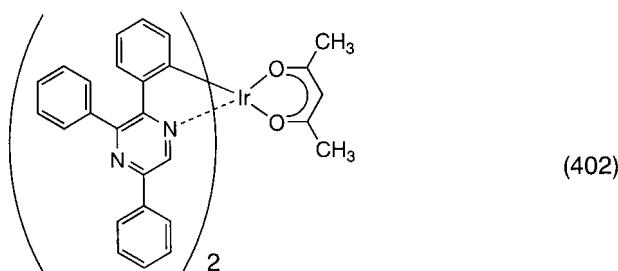
【0311】

Ir(tppr)₂(acac) の合成

以下では、構造式 (402) で表される (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)) の合成例を具体的に例示する。

【0312】

【化 83】



【0313】

【ステップ 1】

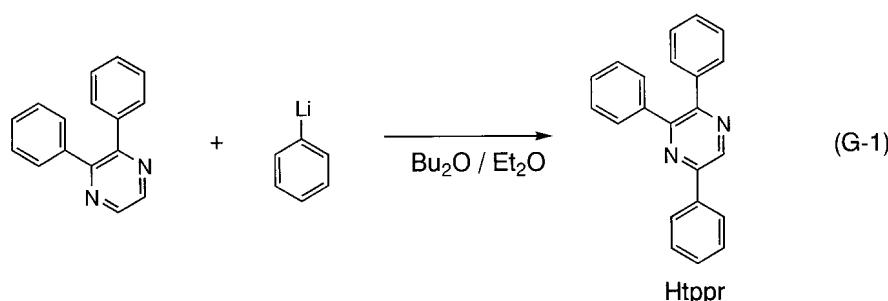
2,3,5-トリフェニルピラジン (略称: Htppr) の合成について説明する。

【0314】

まず、窒素雰囲気にて、フェニルリチウムのジブチルエーテル溶液 ((株)和光純薬工業製、2.1 mol/L) 5.5 mL とジエチルエーテル 50 mL を混合した溶液を調製した。次に、氷冷しながら、この溶液に 2,3-ジフェニルピラジン 2.43 g を滴下し、室温にて 24 時間攪拌した。攪拌後、その混合物に水を加え、ジエチルエーテルにて有機層を抽出した。抽出した有機層を水で洗浄し、硫酸マグネシウムにて乾燥した。乾燥後、有機層に活性二酸化マンガンを過剰に加え、よくかき混ぜた後ろ過した。ろ液の溶媒を除去した後、得られた残渣をエタノールで再結晶することにより、ピラジン誘導体 Htppr を得た (黄色粉末、収率 56%)。ステップ 1 の合成スキームを下記 (G-1) に示す。

【0315】

【化 84】



【0316】

【ステップ 2】

ジ-μ-クロロ-ビス [ビス (2,3,5-トリフェニルピラジナト) イリジウム (III)]

10

20

30

40

50

I)] (略称 : [Ir (t p p r)₂ Cl]₂) の合成について説明する。

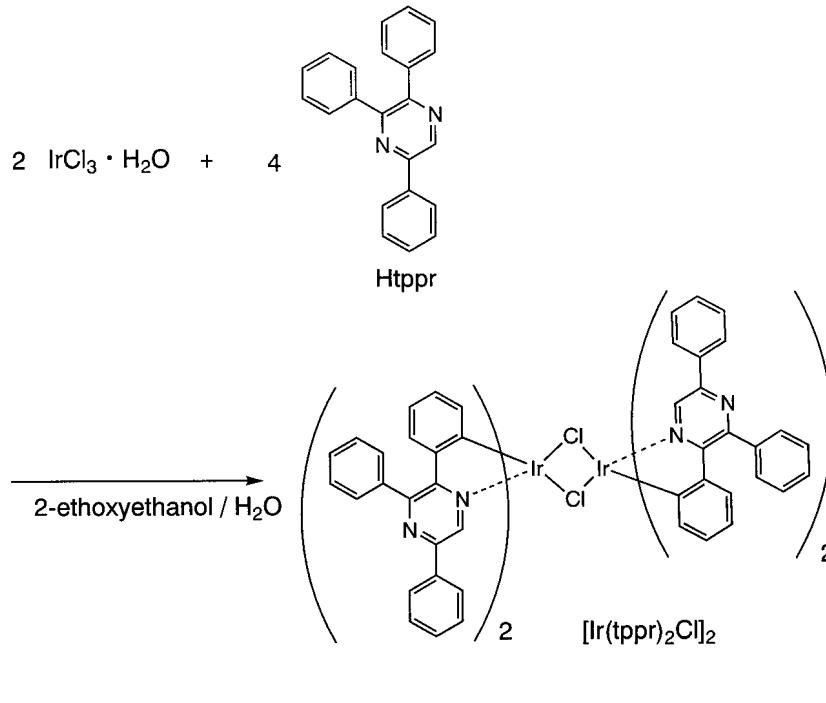
【 0 3 1 7 】

次に、2 - エトキシエタノール 30 mL と水 10 mL との混合溶媒に、上記ステップ 1 で得たピラジン誘導体 Htppr を 1.08 g、塩化イリジウム水和物 (IrCl₃ · H₂O) (Sigma - Aldrich 社製) を 0.73 g 混合し、その混合物を窒素雰囲気にて 16 時間還流した。析出してきた粉末をろ過し、エタノール、エーテル、次いでヘキサンにて洗浄することにより、複核錯体 [Ir (t p p r)₂ Cl]₂ を得た (橙色粉末、収率 97 %)。ステップ 2 の合成スキームを下記 (G - 2) に示す。

【 0 3 1 8 】

【 化 8 5 】

10



20

(G-2)

【 0 3 1 9 】

30

[ステップ 3]

(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 (II) (略称 : Ir (t p p r)₂ (a c a c)) の合成について説明する。

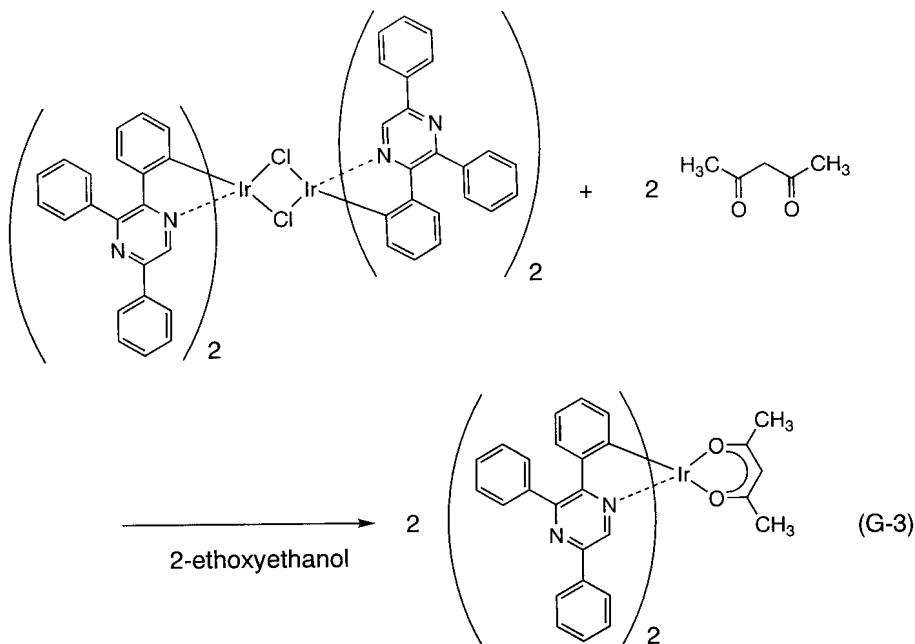
【 0 3 2 0 】

40

さらに、2 - エトキシエタノール 40 mL を溶媒として、上記ステップ 2 で得た複核錯体 [Ir (t p p r)₂ Cl]₂ を 2.00 g、アセチルアセトンを 0.37 mL、炭酸ナトリウムを 1.26 g 混合し、その混合物を窒素雰囲気下にて 18 時間還流した。還流後、その混合物をろ過し、ろ液を一週間放置した。その後、析出した結晶をろ過することにより除去し、ろ液の溶媒を留去した。得られた残渣をジクロロメタンとエタノールの混合溶媒で再結晶し、再結晶により得られた粉末をエタノール、次いでエーテルにて洗浄することにより、有機金属錯体 [Ir (t p p r)₂ (a c a c)] を得た (赤色粉末、収率 16 %)。ステップ 3 の合成スキームを下記 (G - 3) に示す。

【 0 3 2 1 】

【化86】



10

20

30

40

50

【0322】

なお、上記ステップ3で得られた赤色粉末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32に示す。図32(A)の縦軸を拡大したものを図32(B)に示した。このことから、本合成例1において、上述の構造式(402)で表される有機金属錯体[Ir(tppr)₂(acac)]が得られたことがわかった。

【0323】

¹H-NMR(CDC1₃, 300MHz): δ = 1.92(s, 6H), 5.35(s, 1H), 6.45-6.54(m, 4H), 6.67(td, 2H), 6.91(d, 2H), 7.41-7.57(m, 12H), 7.81(m, 4H), 8.08(dd, 4H), 8.98(s, 2H)。

【0324】

また、得られた有機金属錯体[Ir(tppr)₂(acac)]の分解温度T_dを示差熱熱重量同時測定装置((株)セイコー電子製、TG/DTA 320型)により測定したところ、T_d = 331 であり、良好な耐熱性を示すことがわかった。

【0325】

次に、[Ir(tppr)₂(acac)]の吸収スペクトルを測定した。吸収スペクトルの測定は紫外可視分光光度計((株)日本分光製 V550型)を用い、脱気したジクロロメタン溶液(0.10mmol/L)を用いて、室温で測定を行った。また、[Ir(tppr)₂(acac)]の発光スペクトルを測定した。発光スペクトルの測定は蛍光光度計((株)浜松ホトニクス製 FS920)を用い、脱気したジクロロメタン溶液(0.35mmol/L)を用いて、室温で測定を行った。測定結果を図33に示す。横軸は波長、縦軸はモル吸光係数および発光強度を表す。

【0326】

図33に示す通り、有機金属錯体[Ir(tppr)₂(acac)]は、622nmに発光ピークを有しており、溶液からは赤橙色の発光が観測された。

【0327】

なお、有機金属錯体[Ir(tppr)₂(acac)]は、可視光領域にいくつもの吸収ピークが観測される。これは、オルトメタル錯体のようないくつかの有機金属錯体に見られる独特の吸収であり、一重項MLCT遷移、三重項-^{*}遷移、三重項MLCT遷移などに対応すると類推される。特に、最も長波長側の吸収ピークが可視光領域において

プロードな裾を引いており、三重項MLCT遷移であると考えられる。すなわち、有機金属錯体 [Ir(tppr)₂(aca)₁] は、三重項励起状態への直接光励起や項間交差が可能な化合物であることが分かった。したがって、得られた発光も三重項励起状態からの発光、すなわち燐光であると考えられる。

【0328】

【ステップ4】

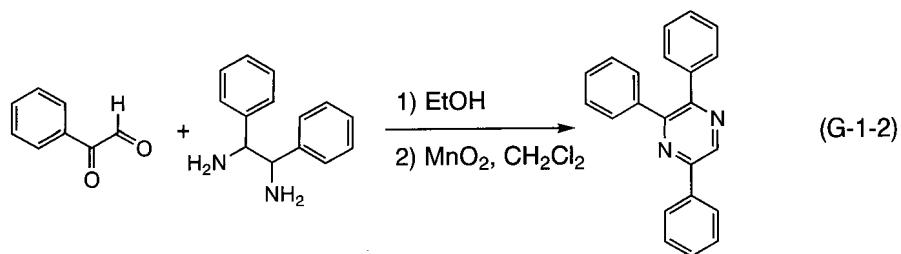
上述したステップ1で合成した2,3,5-トリフェニルピラジン（略称：Htppr）に関し、ステップ1とは異なる合成方法を例示する。

【0329】

まず、エタノール200mLを溶媒として、フェニルグリオキサール（東京化成工業株式会社製）4.60gとmeso-1,2-ジフェニルエチレンジアミン7.28gを混合し、その混合物を窒素雰囲気にて6時間還流した。還流後、この混合物の溶媒を留去し、得られた残渣をエタノールにて再結晶した。再結晶により得られた黄土色粉末をジクロロメタンに溶解し、この溶液に活性二酸化マンガンを過剰に加え、よくかき混ぜた後ろ過した。ろ液の溶媒を留去した後、得られた残渣をエタノールで再結晶することにより、ピラジン誘導体Htpprを得た（黄色粉末、収率37%）。ステップ4の合成スキームを下記（G-1-2）に示す。

【0330】

【化87】



【図面の簡単な説明】

【0331】

【図1】本発明の発光素子を説明する図。

30

【図2】本発明の発光素子を説明する図。

【図3】本発明の発光素子を説明する図。

【図4】本発明の有機半導体素子を説明する図。

【図5】本発明の発光装置を説明する図。

【図6】本発明の発光装置を説明する図。

【図7】本発明の電子機器を説明する図。

【図8】本発明の電子機器を説明する図。

【図9】本発明の照明装置を説明する図。

【図10】本発明の照明装置を説明する図。

【図11】本発明のキノキサリン誘導体である2-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル-3-フェニルキノキサリン（略称：BPA1PQ）の¹H NMRチャートを示す図。

40

【図12】本発明のキノキサリン誘導体である2-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル-3-フェニルキノキサリン（略称：BPA1PQ）のトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを示す図。

【図13】本発明のキノキサリン誘導体である2-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル-3-フェニルキノキサリン（略称：BPA1PQ）の薄膜の吸収スペクトルを示す図。

【図14】本発明のキノキサリン誘導体である2-[N-(ビフェニル-4-イル)-N-フェニルアミノ]フェニル-3-フェニルキノキサリン（略称：BPA1PQ）

50

) の薄膜の発光スペクトルを示す図。

【図 15】本発明のキノキサリン誘導体である 2 - { 4 - [N - (ピフェニル - 4 - イル) - N - フェニルアミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B P A 1 P Q) の C V 測定結果を示す図。

【図 16】本発明のキノキサリン誘導体である 2 - { 4 - [N - (ピフェニル - 4 - イル) - N - フェニルアミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B P A 1 P Q) の C V 測定結果を示す図。

【図 17】本発明のキノキサリン誘導体である 2 - { 4 - [N 、 N - ジ (ピフェニル - 4 - イル) アミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B B A 1 P Q) の ¹ H N M R チャートを示す図。

10

【図 18】本発明のキノキサリン誘導体である 2 - { 4 - [N 、 N - ジ (ピフェニル - 4 - イル) アミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B B A 1 P Q) のトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを示す図。

【図 19】本発明のキノキサリン誘導体である 2 - { 4 - [N 、 N - ジ (ピフェニル - 4 - イル) アミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B B A 1 P Q) の薄膜の吸収スペクトルを示す図。

【図 20】本発明のキノキサリン誘導体である 2 - { 4 - [N 、 N - ジ (ピフェニル - 4 - イル) アミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B B A 1 P Q) の薄膜の発光スペクトルを示す図。

20

【図 21】本発明のキノキサリン誘導体である 2 - { 4 - [N 、 N - ジ (ピフェニル - 4 - イル) アミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B B A 1 P Q) の薄膜の C V 測定結果を示す図。

【図 22】本発明のキノキサリン誘導体である 2 - { 4 - [N 、 N - ジ (ピフェニル - 4 - イル) アミノ] フェニル } - 3 - フェニルキノキサリン (略称 : B B A 1 P Q) の薄膜の C V 測定結果を示す図。

【図 23】実施例の発光素子を説明する図。

【図 24】実施例 3 の発光素子の電流密度 輝度特性を示す図。

【図 25】実施例 3 の発光素子の電圧 輝度特性を示す図。

【図 26】実施例 3 の発光素子の輝度 電流効率特性を示す図。

30

【図 27】実施例 3 の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【図 28】実施例 4 の発光素子の電流密度 輝度特性を示す図。

【図 29】実施例 4 の発光素子の電圧 輝度特性を示す図。

【図 30】実施例 4 の発光素子の輝度 電流効率特性を示す図。

【図 31】実施例 4 の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【図 32】(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)] の ¹ H N M R チャートを示す図。

【図 33】(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)] の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを示す図。

40

【符号の説明】

【 0 3 3 2 】

1 0 1 基板

1 0 2 第 1 の電極

1 0 3 E L 層

1 0 4 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

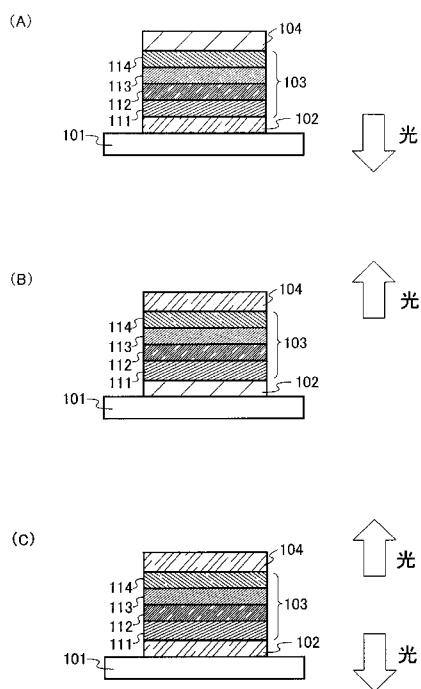
1 1 4 電子輸送層

50

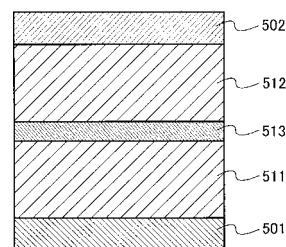
3 0 1	基板	
3 0 2	第 1 の 電 極	
3 0 4	第 2 の 電 極	
3 1 1	電子輸送層	
3 1 2	発光層	
3 1 3	正孔輸送層	10
3 1 4	正孔注入層	
5 0 1	第 1 の 電 極	
5 0 2	第 2 の 電 極	
5 1 1	第 1 の 発光ユニット	
5 1 2	第 2 の 発光ユニット	
5 1 3	電荷発生層	
6 0 1	駆動回路部 (ソース側駆動回路)	
6 0 2	画素部	
6 0 3	駆動回路部 (ゲート側駆動回路)	
6 0 4	封止基板	
6 0 5	シール材	
6 0 7	空間	
6 0 8	配線	
6 0 9	F P C (フレキシブルプリントサーキット)	20
6 1 0	素子基板	
6 1 1	スイッチング用TFT	
6 1 2	電流制御用TFT	
6 1 3	第 1 の 電 極	
6 1 4	絶縁物	
6 1 6	E L 層	
6 1 7	第 2 の 電 極	
6 1 8	発光素子	
6 2 3	nチャネル型TFT	
6 2 4	pチャネル型TFT	30
9 0 1	筐体	
9 0 2	液晶層	
9 0 3	パックライト	
9 0 4	筐体	
9 0 5	ドライバI C	
9 0 6	端子	
9 5 1	基板	
9 5 2	電極	
9 5 3	絶縁層	
9 5 4	隔壁層	40
9 5 5	E L 層	
9 5 6	電極	
1 2 0 1	ソース電極	
1 2 0 2	活性層	
1 2 0 3	ドレイン電極	
1 2 0 4	ゲート電極	
2 0 0 1	筐体	
2 0 0 2	光源	
2 1 0 1	ガラス基板	
2 1 0 2	第 1 の 電 極	50

2 1 0 3	複合材料を含む層	
2 1 0 4	正孔輸送層	
2 1 0 5	発光層	
2 1 0 6	電子輸送層	
2 1 0 7	電子注入層	
2 1 0 8	第2の電極	
3 0 0 1	照明装置	
9 1 0 1	筐体	
9 1 0 2	支持台	
9 1 0 3	表示部	10
9 1 0 4	スピーカー部	
9 1 0 5	ビデオ入力端子	
9 2 0 1	本体	
9 2 0 2	筐体	
9 2 0 3	表示部	
9 2 0 4	キー ボード	
9 2 0 5	外部接続ポート	
9 2 0 6	ポインティングデバイス	
9 4 0 1	本体	
9 4 0 2	筐体	20
9 4 0 3	表示部	
9 4 0 4	音声入力部	
9 4 0 5	音声出力部	
9 4 0 6	操作キー	
9 4 0 7	外部接続ポート	
9 4 0 8	アンテナ	
9 5 0 1	本体	
9 5 0 2	表示部	
9 5 0 3	筐体	
9 5 0 4	外部接続ポート	30
9 5 0 5	リモコン受信部	
9 5 0 6	受像部	
9 5 0 7	バッテリー	
9 5 0 8	音声入力部	
9 5 0 9	操作キー	
9 5 1 0	接眼部	

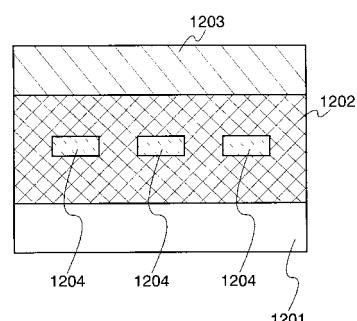
【図1】



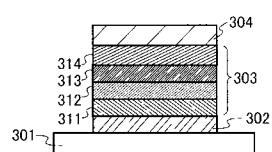
【図3】



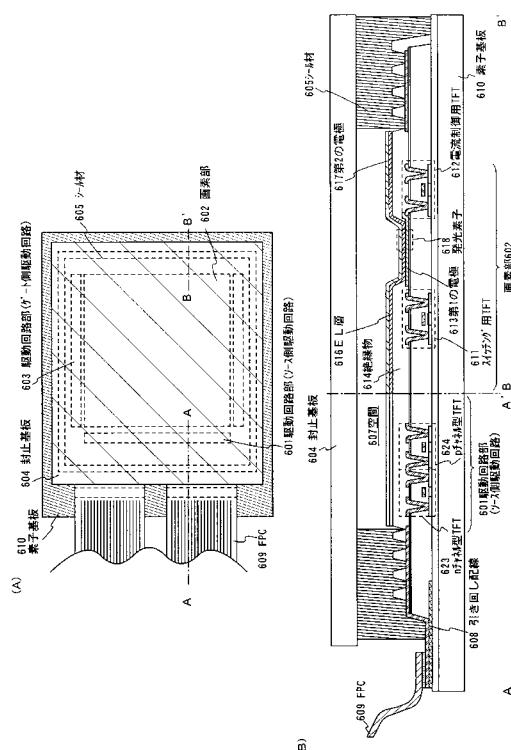
【図4】



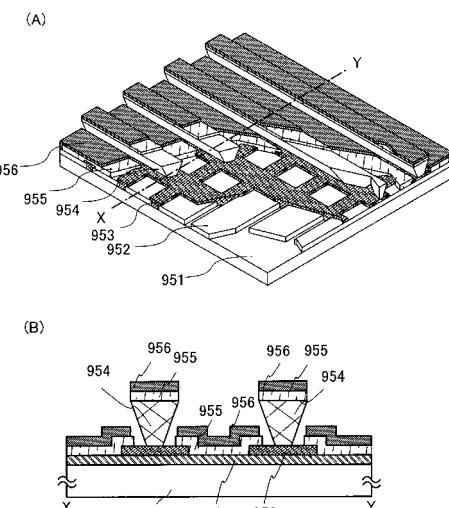
【図2】



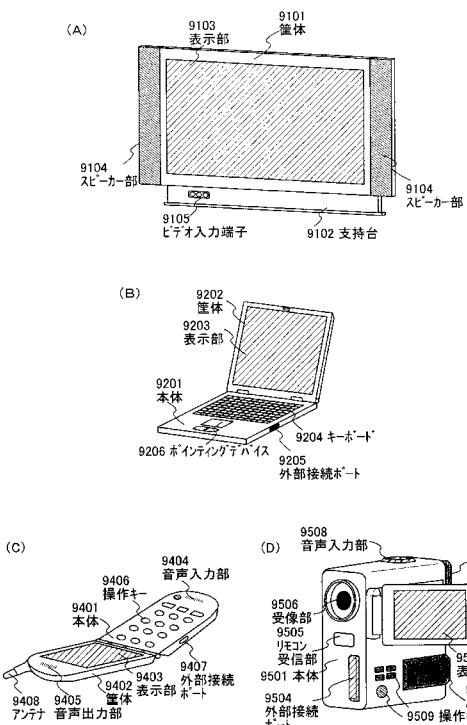
【図5】



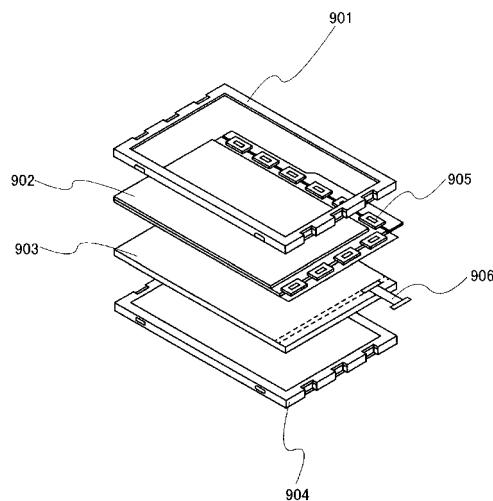
【図6】



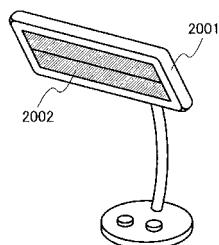
【図7】



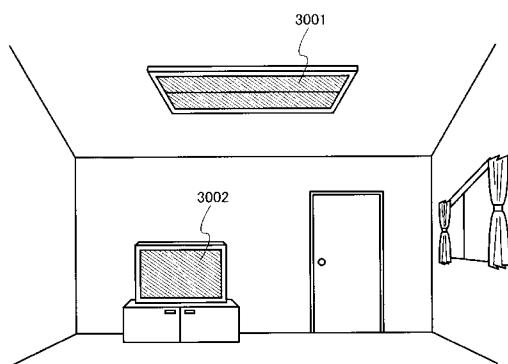
【図8】



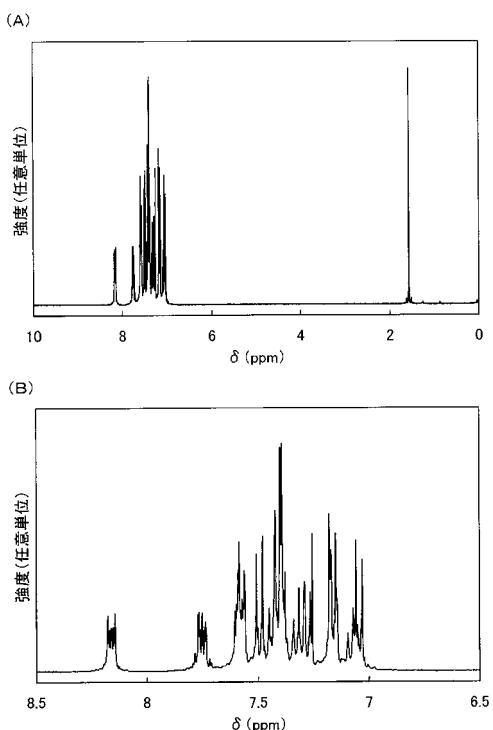
【図9】



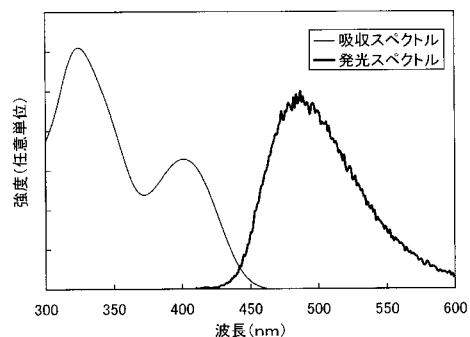
【図10】



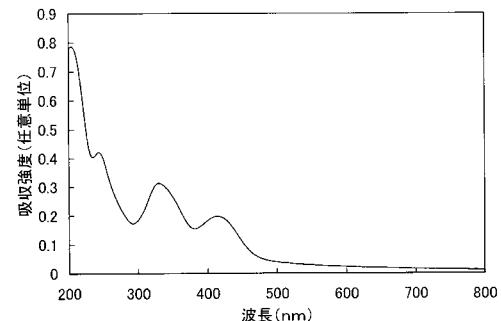
【図11】



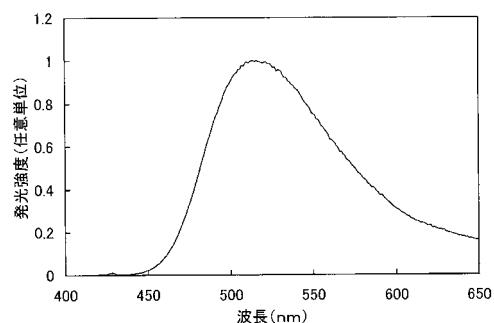
【図12】



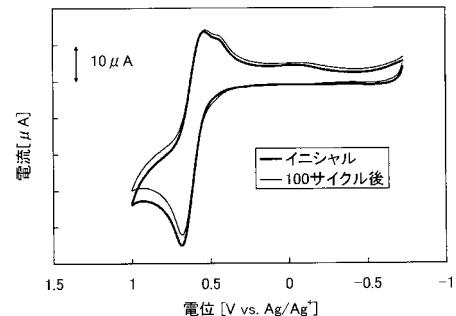
【図13】



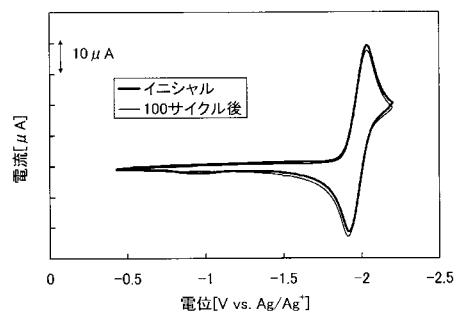
【図14】



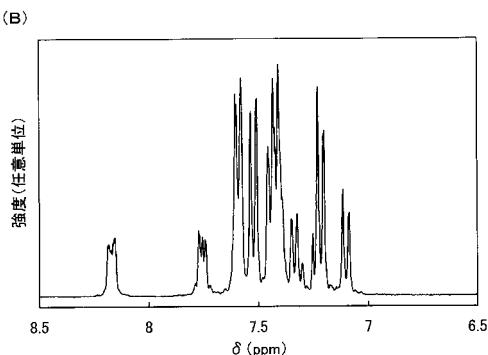
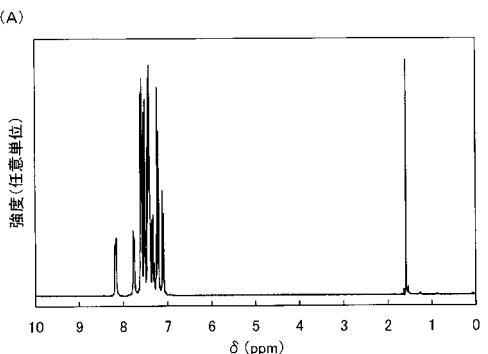
【図15】



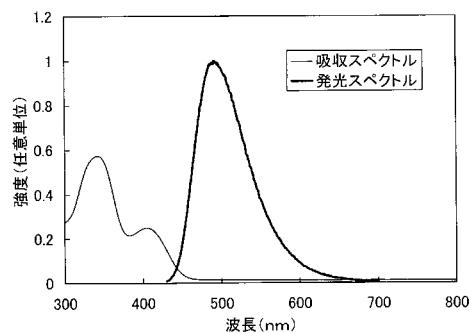
【図16】



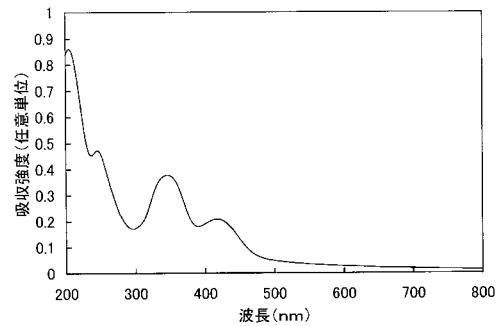
【図17】



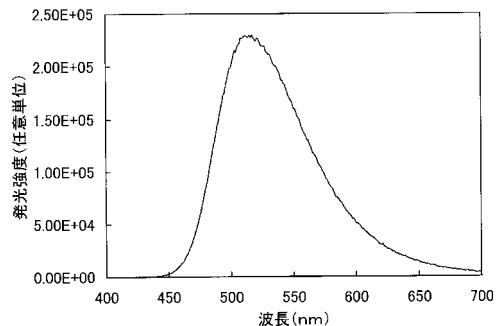
【図18】



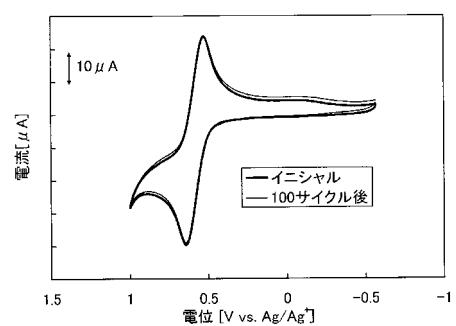
【図19】



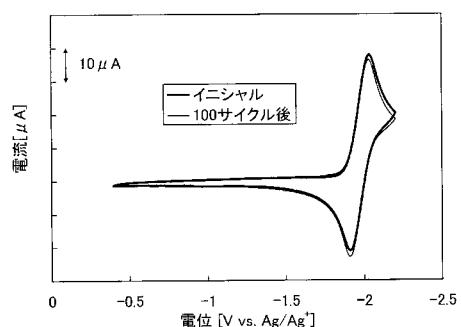
【図20】



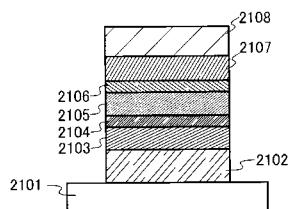
【図21】



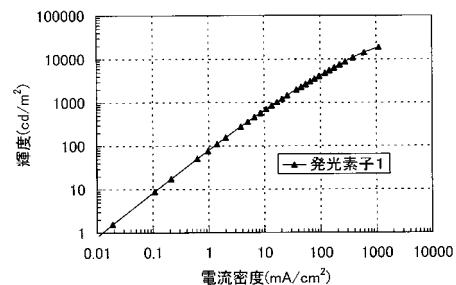
【図22】



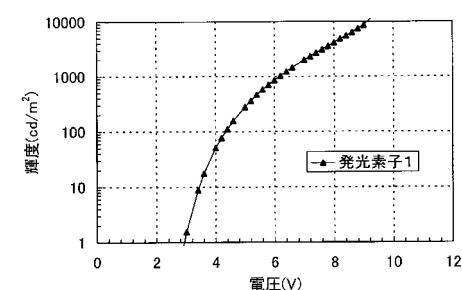
【図23】



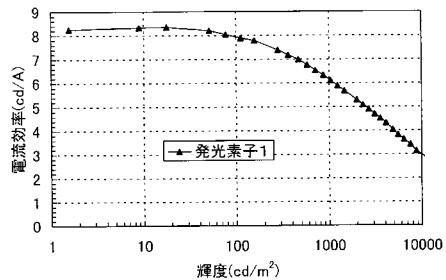
【図24】



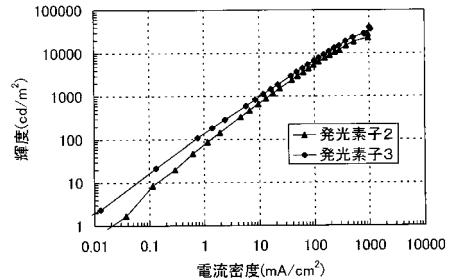
【図25】



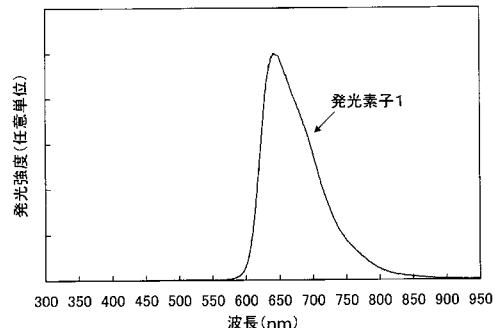
【図26】



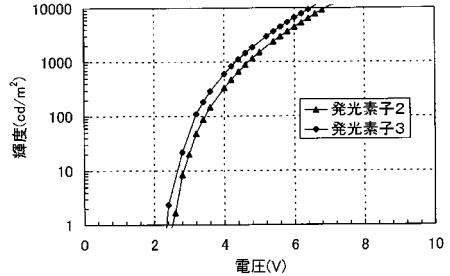
【図28】



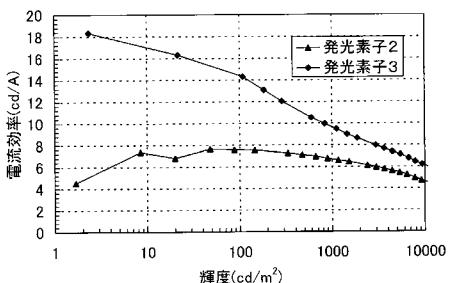
【図27】



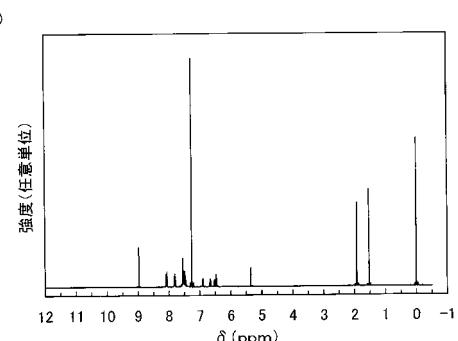
【図29】



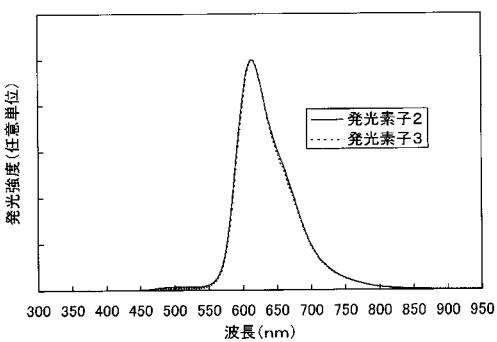
【図30】



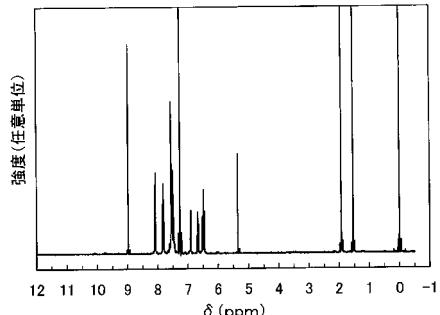
【図32】



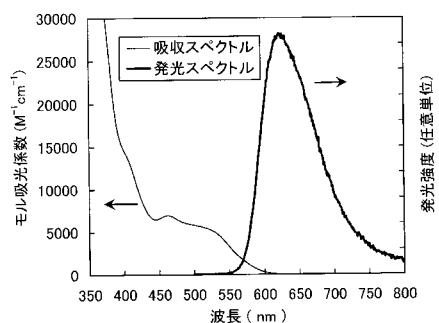
【図31】



(B)



【図 3 3】



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

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC04 CC12 CC14 DD53 DD59 DD66 DD67 DD68

【要約の続き】

【選択図】なし