

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号

特許第7066499号

(P7066499)

(45)発行日 令和4年5月13日(2022.5.13)

(24)登録日 令和4年5月2日(2022.5.2)

(51)国際特許分類

F I

C 0 7 D 307/77 (2006.01)

C 0 7 D 307/77

C S P

H 0 1 L 51/50 (2006.01)

H 0 5 B 33/14

B

C 0 9 K 11/06 (2006.01)

C 0 9 K 11/06

6 3 5

C 0 7 F 7/10 (2006.01)

C 0 7 F 7/10

R

請求項の数 17 (全119頁)

(21)出願番号 特願2018-84206(P2018-84206)
 (22)出願日 平成30年4月25日(2018.4.25)
 (65)公開番号 特開2018-188426(P2018-188426
 A)
 (43)公開日 平成30年11月29日(2018.11.29)
 審査請求日 令和3年4月14日(2021.4.14)
 (31)優先権主張番号 特願2017-91582(P2017-91582)
 (32)優先日 平成29年5月2日(2017.5.2)
 (33)優先権主張国・地域又は機関
 日本国(JP)

(73)特許権者 000153878
 株式会社半導体エネルギー研究所
 神奈川県厚木市長谷398番地
 (72)発明者 春山 拓哉
 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 橋本 直明
 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会
 社半導体エネルギー研究所内
 (72)発明者 滝田 悠介
 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

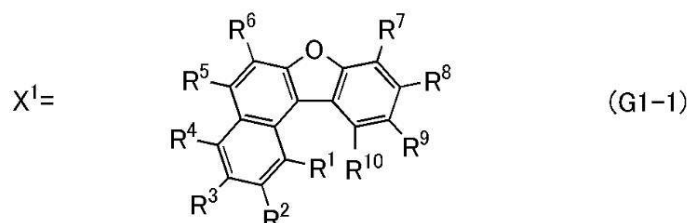
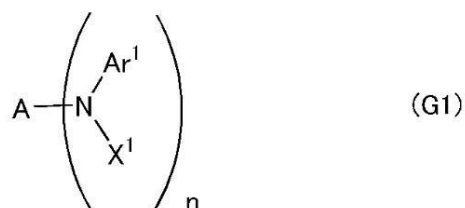
(54)【発明の名称】 有機化合物、発光素子、発光装置、電子機器、および照明装置

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式(G1)で表される有機化合物。

【化 1】



(式中、Aは、ピレン骨格を表し、前記ピレン骨格が置換基を有する場合の前記置換基としては、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、を2つ有するジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを有する。また、前記ジアリールアミノ基が有する2つのアリール基は同じでも異なってもよい。また、一般式(G1-1)で表されるX¹において、R⁶およびR⁷の一方は、一般式(G1)中のNと結合し、前記R⁶およびR⁷の他方は、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹は置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。nは、1乃至4を表し、nが2以上の場合、アミン骨格は同じであっても異なってもよい。)

【請求項 2】

一般式(G2)で表される有機化合物。

10

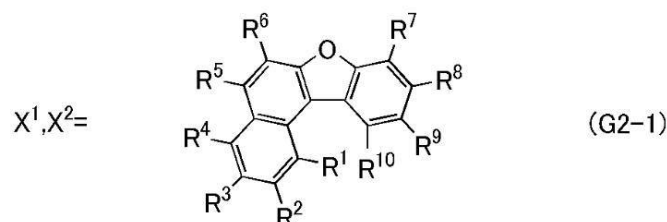
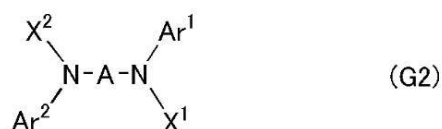
20

30

40

50

【化 2】



(式中、Aは、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、一般式(G2-1)で表されるX¹およびX²はそれぞれ独立し、R⁶およびR⁷の一方は、一般式(G2)中のNと結合し、前記R⁶およびR⁷の他方は、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹およびAr²は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。)

【請求項 3】

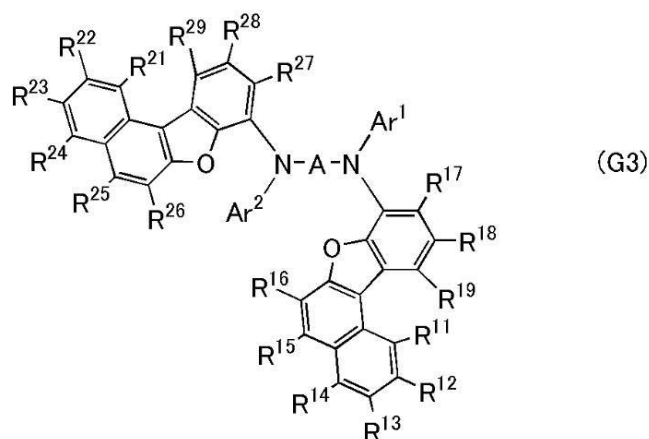
請求項1または請求項2において、

前記R⁶およびR⁷の他方は、炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基である有機化合物。

【請求項 4】

一般式(G3)で表される有機化合物。

【化 3】



(式中、Aは、置換もしくは無置換のピレン骨格を表す。また、Ar¹およびAr²は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹

6 および R²⁶ は、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表し、R¹¹ ~ R¹⁵、R¹⁷ ~ R¹⁹、R²¹ ~ R²⁵ および R²⁷ ~ R²⁹ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。)

【請求項 5】

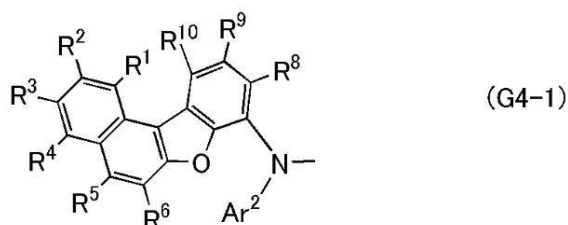
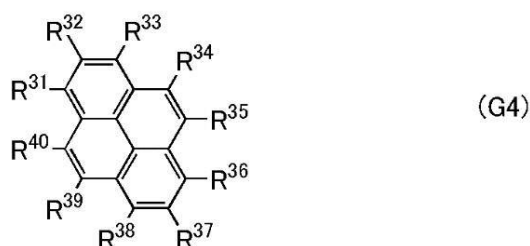
請求項 4 において、

前記 R¹⁶ および R²⁶ は、炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基である有機化合物。

【請求項 6】

一般式 (G4) で表される有機化合物。

【化 4】



(式中、R³¹、R³³、R³⁵、および R³⁸ の少なくとも一は、一般式 (G4-1) で表される基を有し、前記 R³¹、R³³、R³⁵、および R³⁸ の 2 以上が前記一般式 (G4-1) で表される基を有する場合、それぞれの構造は同じであっても異なっても良い。また、Ar² は置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。また、R⁶ は置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、R³¹ ~ R⁴⁰ のうち前記一般式 (G4-1) で表される基を有さない全て、R¹ ~ R⁵ および R⁸ ~ R¹⁰ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。)

【請求項 7】

請求項 6 において、

前記 R⁶ は、炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基である有機化合物。

【請求項 8】

請求項 3、5、または 7 において、

前記単環式飽和炭化水素基がシクロヘキシル基である有機化合物。

【請求項 9】

式 (100) または式 (101) で表される有機化合物。

10

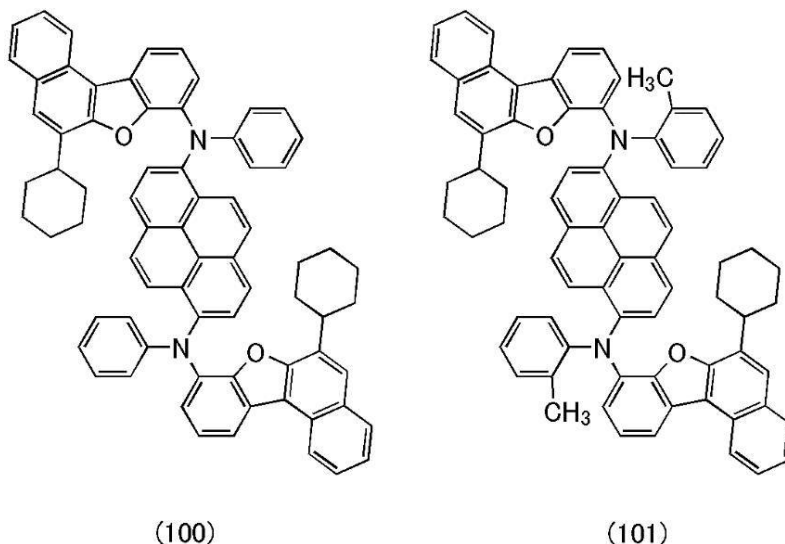
20

30

40

50

【化 5】



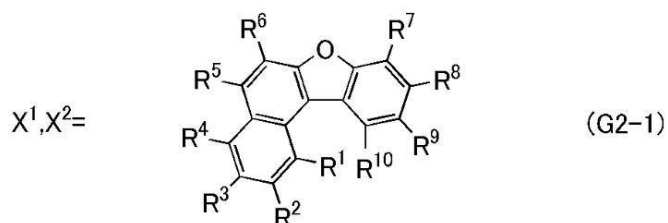
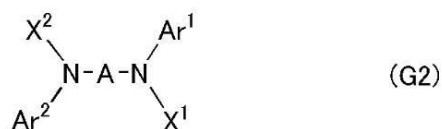
10

【請求項 10】

一般式 (G 2) で表される有機化合物。

20

【化 6】



30

(式中、A は、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、一般式 (G 2-1) で表される X^1 および X^2 はそれぞれ独立し、 R^6 および R^7 の一方は、一般式 (G 2) 中の N と結合し、前記 R^6 および R^7 の他方は、炭素数 3 乃至 18 のトリアルキシル基、置換もしくは無置換の炭素数 18 乃至 30 のトリアリールシリル基のいずれかを表す。また、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。また、 $R^1 \sim R^5$ および $R^8 \sim R^{10}$ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。)

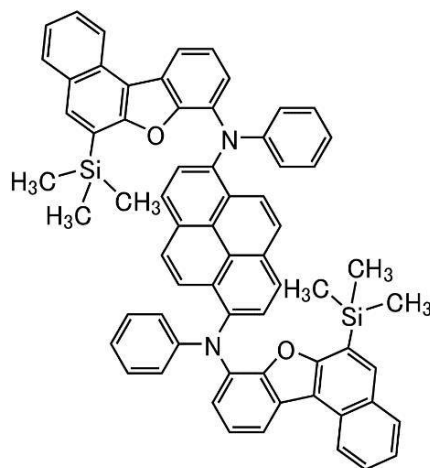
40

【請求項 11】

式 (145) で表される有機化合物。

50

【化 7】



(145)

10

【請求項 1 2】

請求項 1 乃至請求項 1 1 のいずれかーに記載の有機化合物を用いた発光素子。

【請求項 1 3】

一対の電極間に E L 層を有し、

20

前記 E L 層は、請求項 1 乃至請求項 1 1 のいずれかーに記載の有機化合物を有する発光素子。

【請求項 1 4】

一対の電極間に E L 層を有し、

前記 E L 層は、発光層を有し、

前記発光層は、請求項 1 乃至請求項 1 1 のいずれかーに記載の有機化合物を有する発光素子。

【請求項 1 5】

請求項 1 2 乃至請求項 1 4 のいずれかーに記載の発光素子と、

トランジスタ、または基板の少なくとも一と、を有する発光装置。

30

【請求項 1 6】

請求項 1 5 に記載の発光装置と、

マイク、カメラ、操作用ボタン、外部接続部、または、スピーカの少なくとも一と、を有する電子機器。

【請求項 1 7】

請求項 1 2 乃至請求項 1 4 のいずれかーに記載の発光素子と、

筐体、カバー、または、支持台の少なくとも一と、を有する照明装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

40

本発明の一態様は、有機化合物、発光素子、発光装置、電子機器、および照明装置に関する。但し、本発明の一態様は、上記の技術分野に限定されない。すなわち、本発明の一態様は、物、方法、製造方法、または駆動方法に関する。または、本発明の一態様は、プロセス、マシン、マニュファクチャ、または、組成物（コンポジション・オブ・マター）に関する。また、具体的には、半導体装置、表示装置、液晶表示装置などを一例として挙げることができる。

【背景技術】

【0 0 0 2】

一対の電極間に E L 層を挟んでなる発光素子（有機 E L 素子ともいう）は、薄型軽量、入力信号に対する高速な応答性、低消費電力などの特性を有することから、これらを適用し

50

たディスプレイは、次世代のフラットパネルディスプレイとして注目されている。

【0003】

発光素子は、一对の電極間に電圧を印加することにより、各電極から注入された電子およびホールがEL層において再結合し、EL層に含まれる発光物質（有機化合物）が励起状態となり、その励起状態が基底状態に戻る際に発光する。なお、励起状態の種類としては、一重項励起状態（S*）と三重項励起状態（T*）とがあり、一重項励起状態からの発光が蛍光、三重項励起状態からの発光が燐光と呼ばれている。また、発光素子におけるそれらの統計的な生成比率は、S*：T*＝1：3であると考えられている。発光物質から得られる発光スペクトルはその発光物質特有のものであり、異なる種類の有機化合物を発光物質として用いることによって、様々な発光色の発光素子を得ることができる。

10

【0004】

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為に、素子構造の改良や材料開発等が盛んに行われている（例えば、特許文献1参照。）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【文献】特開2010-182699号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

発光素子の開発において、発光素子に用いる有機化合物は、その特性を高める上で非常に重要である。そこで、本発明の一態様では、新規な有機化合物を提供する。すなわち、素子特性や信頼性を高める上で有効な新規の有機化合物を提供する。また、本発明の一態様では、発光素子に用いることができる新規な有機化合物を提供する。また、本発明の一態様では、発光素子のEL層に用いることができる、新規な有機化合物を提供する。また、本発明の一態様である新規な有機化合物を用いた高効率で信頼性の高い新規な発光素子を提供する。また、本発明の一態様である新規な有機化合物を用いた色純度の良い青色発光を呈する新規な発光素子を提供する。また、新規な発光装置、新規な電子機器、または新規な照明装置を提供する。なお、これらの課題の記載は、他の課題の存在を妨げるものではない。なお、本発明の一態様は、必ずしも、これらの課題の全てを解決する必要はない。なお、これら以外の課題は、明細書、図面、請求項などの記載から、自ずと明らかとなるものであり、明細書、図面、請求項などの記載から、これら以外の課題を抽出することが可能である。

20

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明の一態様は、ベンゾナフトフラン骨格を有し、下記一般式（G1）で表される有機化合物である。

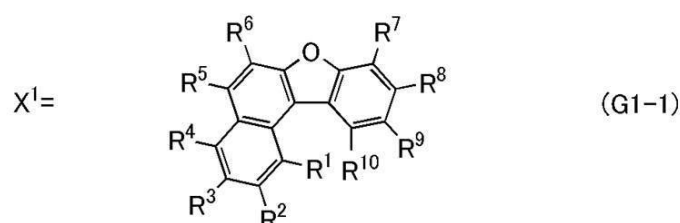
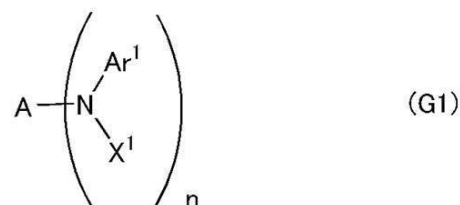
【0008】

30

40

50

【化 1】



【0009】

なお、一般式（G1）において、Aは、ピレン骨格を表し、前記ピレン骨格が置換基を有する場合の置換基としては、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、を2つ有するジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを有する。また、ジアリールアミノ基が有する2つのアリール基は同じでも異なってもよい。また、一般式（G1-1）で表されるX¹において、R⁶およびR⁷の一方は、一般式（G1）中のNと結合し、前記R⁶およびR⁷の他方は、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹は置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。nは、1乃至4を表し、nが2以上の場合、アミン骨格は同じであっても異なってもよい。

【0010】

また、本発明の別の一態様は、下記一般式（G2）で表される有機化合物である。

【0011】

10

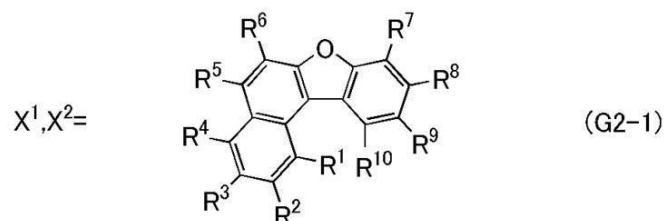
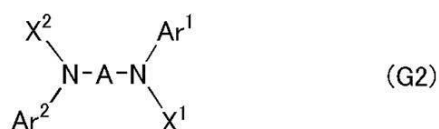
20

30

40

50

【化 2】



【 0 0 1 2 】

なお、一般式（G2）において、Aは、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、一般式（G2-1）で表されるX¹およびX²はそれぞれ独立し、R⁶およびR⁷の一方は、一般式（G2）中のNと結合し、前記R⁶およびR⁷の他方は、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹およびAr²は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。

【 0 0 1 3 】

なお、上記各構成において、R⁶およびR⁷の他方は、炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基であると好ましい。さらに炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基としては、特にシクロヘキシル基が好ましい。

【 0 0 1 4 】

また、本発明の別の一態様として、上記一般式（G2）において、「Aは、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、一般式（G2-1）で表されるX¹およびX²はそれぞれ独立し、R⁶およびR⁷の一方は、一般式（G2）中のNと結合し、前記R⁶およびR⁷の他方は、炭素数3乃至18のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数18乃至30のトリアリールシリル基のいずれかを表す。また、Ar¹およびAr²は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。」とすることができる。

【 0 0 1 5 】

また、本発明の別の一態様は、下記一般式（G3）で表される有機化合物である。

【 0 0 1 6 】

10

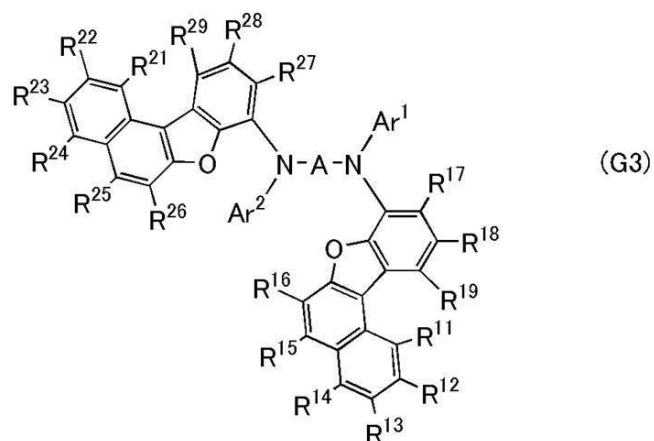
20

30

40

50

【化 3】



【 0 0 1 7】

なお、一般式（G3）において、Aは、置換もしくは無置換のピレン骨格を表す。また、R16およびR26は、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表し、R11～R15およびR17～R19およびR21～R25およびR27～R29はそれぞれ独立に、水素、炭素数1～7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。

【 0 0 1 8】

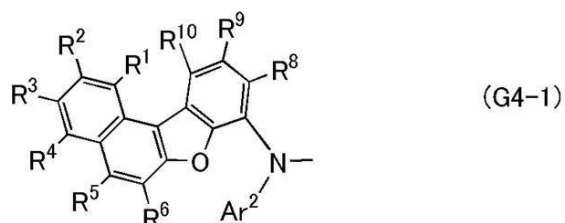
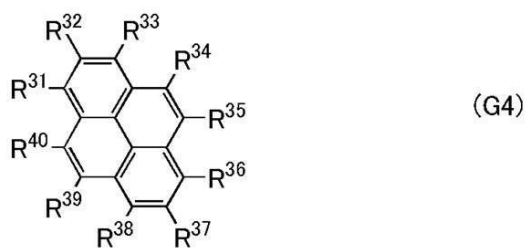
なお、上記各構成において、R16およびR26は、炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基であると好ましい。さらに炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基としては、特にシクロヘキシル基が好ましい。

【 0 0 1 9】

また、本発明の別の一態様は、下記一般式（G4）で表される有機化合物である。

【 0 0 2 0】

【化 4】



【0021】

なお、一般式（G4）において、R³¹、R³³、R³⁵、およびR³⁸の少なくとも一は、一般式（G4-1）で表される基を有し、R³¹、R³³、R³⁵、およびR³⁸の2以上が一般式（G4-1）で表される基を有する場合、それぞれの構造は同じであっても異なっても良い。また、R⁶は炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、R³¹～R⁴⁰のうち一般式（G4-1）で表される基を有さない全て、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。

10

【0022】

なお、上記各構成において、R⁶は、炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基であると好ましい。さらに炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基としては、特にシクロヘキシル基が好ましい。

【0023】

上述した本発明の一態様である有機化合物は、ピレン骨格にアミンが結合した構造を有し、アミンとベンゾナフトフラン骨格とが結合した構造を有する。また、ベンゾナフトフラン骨格の6位または8位のいずれか一方においてアミンと結合し、ベンゾナフトフラン骨格の6位または8位のいずれか他方（アミンとの結合を形成しない位置）は特定の置換基、すなわち、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを有することを特徴とする。なお、このような構造を有することで、発光スペクトルを狭線化させることができる。発光スペクトルを狭線化させることにより、例えば、マイクロキャビティ構造を有するトップエミッション型の発光素子の素子特性を向上させることができる。さらにこのような材料を用いて発光素子を作製することにより、発光素子の信頼性を向上させることができる。また、このような構造とすることで、化合物の昇華性が向上するため、蒸着時の化合物の分解を低減することができる。蒸着時の分解が抑制されることで、信頼性の高い発光素子の提供が可能となる。また、上述した特定の置換基が炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基の場合、効果が顕著である上に、合成の収率も高いため好ましい。特に好ましくはシクロヘキシル基である。

20

30

【0024】

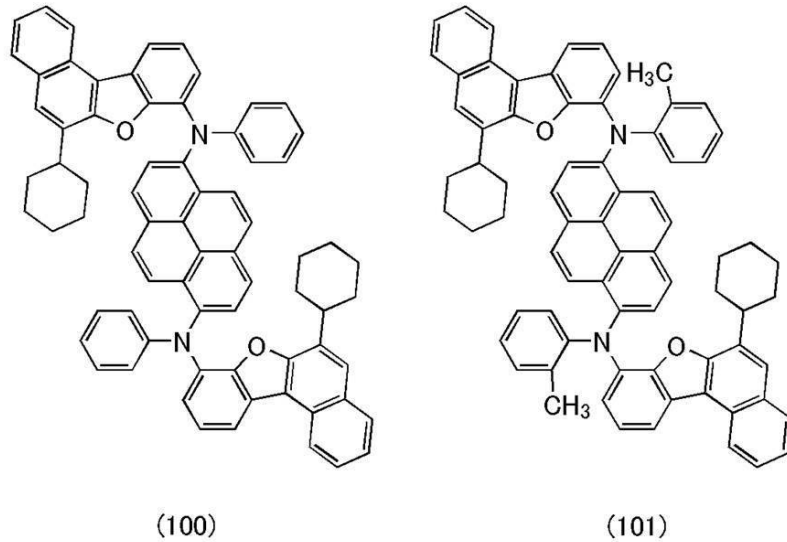
本発明の別の態様は、構造式（100）または構造式（101）で表される有機化合物である。

【0025】

40

50

【化 5】



【 0 0 2 6 】

本発明の別の態様は、上述した本発明の一態様である有機化合物を用いた発光素子である。なお、上記有機化合物に加えてホスト材料を有する発光素子も本発明に含める。

【 0 0 2 7 】

本発明の別の態様は、上述した本発明の一態様である有機化合物を用いた発光素子である。なお、一対の電極間に有する E L 層や、E L 層に含まれる発光層に本発明の一態様である有機化合物を用いて形成された発光素子も本発明に含まれることとする。また、発光素子に加えて、トランジスタ、基板などを有する発光装置も発明の範疇に含める。さらに、これらの発光装置に加えて、マイク、カメラ、操作ボタン、外部接続部、筐体、カバー、支持台または、スピーカ等を有する電子機器や照明装置も発明の範疇に含める。

【 0 0 2 8 】

また、本発明の一態様は、発光素子を有する発光装置を含み、さらに発光装置を有する照明装置も範疇に含めるものである。従って、本明細書中における発光装置とは、画像表示デバイス、または光源（照明装置含む）を指す。また、発光装置に、例えば F P C (F l e x i b l e p r i n t e d c i r c u i t) もしくは T C P (T a p e C a r r i e r P a c k a g e) 等のコネクタが取り付けられたモジュール、T C P 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 C O G (C h i p O n G l a s s) 方式により I C (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。

【発明の効果】

【 0 0 2 9 】

本発明の一態様は、新規な有機化合物を提供することができる。すなわち、素子特性を高める上で有効な新規の有機化合物を提供することができる。また、本発明の一態様では、発光素子に用いることができる新規な有機化合物を提供することができる。また、本発明の一態様では、発光素子の E L 層に用いることができる、新規な有機化合物を提供することができる。また、本発明の一態様である新規な有機化合物を用いた高効率で信頼性の高い新規な発光素子を提供することができる。また、本発明の一態様である新規な有機化合物を用いた色純度の良い青色発光を呈する新規な発光素子を提供することができる。また、新規な発光装置、新規な電子機器、または新規な照明装置を提供することができる。なお、これらの効果の記載は、他の効果の存在を妨げるものではない。なお、本発明の一態様は、必ずしも、これらの効果の全てを有する必要はない。なお、これら以外の効果は、明細書、図面、請求項などの記載から、自ずと明らかとなるものであり、明細書、図面、

請求項などの記載から、これら以外の効果を抽出することが可能である。

【図面の簡単な説明】

【0030】

【図1】発光素子の構造について説明する図。

【図2】発光装置について説明する図。

【図3】発光装置について説明する図。

【図4】電子機器について説明する図。

【図5】電子機器について説明する図。

【図6】自動車について説明する図。

【図7】照明装置について説明する図。

10

【図8】照明装置について説明する図。

【図9】N-フェニル-6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンの¹H-NMRチャート。

【図10】構造式(100)に示す有機化合物の¹H-NMRチャート。

【図11】構造式(100)に示す有機化合物の紫外・可視吸収スペクトル及び発光スペクトル。

【図12】N-(2-メチルフェニル)-6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンの¹H-NMRチャート。

【図13】構造式(101)に示す有機化合物の¹H-NMRチャート。

【図14】構造式(101)に示す有機化合物の紫外・可視吸収スペクトル及び発光スペクトル。

20

【図15】N-フェニル-6-イソプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンの¹H-NMRチャート。

【図16】構造式(116)に示す有機化合物の¹H-NMRチャート。

【図17】発光素子について説明する図。

【図18】発光素子1および比較発光素子2の電流密度-輝度特性を示す図。

【図19】発光素子1および比較発光素子2の電圧-輝度特性を示す図。

【図20】発光素子1および比較発光素子2の輝度-電流効率特性を示す図。

【図21】発光素子1および比較発光素子2の電圧-電流特性を示す図。

【図22】発光素子1および比較発光素子2の発光スペクトルを示す図。

30

【図23】発光素子1および比較発光素子2の信頼性を示す図。

【図24】構造式(118)に示す有機化合物の¹H-NMRチャート。

【図25】構造式(118)に示す有機化合物の紫外・可視吸収スペクトル及び発光スペクトル。

【図26】構造式(117)に示す有機化合物の¹H-NMRチャート。

【図27】構造式(117)に示す有機化合物の紫外・可視吸収スペクトル及び発光スペクトル。

【図28】構造式(145)に示す有機化合物の¹H-NMRチャート。

【図29】構造式(145)に示す有機化合物の紫外・可視吸収スペクトル及び発光スペクトル。

40

【図30】構造式(142)に示す有機化合物の¹H-NMRチャート。

【図31】構造式(142)に示す有機化合物の紫外・可視吸収スペクトル及び発光スペクトル。

【図32】ch-1, 6BnfAPrn-02の¹H-NMRチャート。

【図33】ch-1, 6BnfAPrn-02の紫外・可視吸収スペクトル及び発光スペクトル。

【図34】発光素子3、発光素子4、および発光素子5の電流密度-輝度特性を示す図。

【図35】発光素子3、発光素子4、および発光素子5の電圧-輝度特性を示す図。

【図36】発光素子3、発光素子4、および発光素子5の輝度-電流効率特性を示す図。

【図37】発光素子3、発光素子4、および発光素子5の電圧-電流特性を示す図。

50

【図 3 8】発光素子 3、発光素子 4、および発光素子 5 の発光スペクトルを示す図。

【図 3 9】発光素子 6 および比較発光素子 7 の電流密度－輝度特性を示す図。

【図 4 0】発光素子 6 および比較発光素子 7 の電圧－輝度特性を示す図。

【図 4 1】発光素子 6 および比較発光素子 7 の輝度－電流効率特性を示す図。

【図 4 2】発光素子 6 および比較発光素子 7 の電圧－電流特性を示す図。

【図 4 3】発光素子 6 および比較発光素子 7 の発光スペクトルを示す図。

【図 4 4】発光素子 6 および比較発光素子 7 の色度を示す図。

【発明を実施するための形態】

【0031】

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

【0032】

なお、図面等において示す各構成の、位置、大きさ、範囲などは、理解の簡単のため、実際の位置、大きさ、範囲などを表していない場合がある。このため、開示する発明は、必ずしも、図面等を開示された位置、大きさ、範囲などに限定されない。

【0033】

また、本明細書等において、図面を用いて発明の構成を説明するにあたり、同じものを指す符号は異なる図面間でも共通して用いる。

【0034】

(実施の形態 1)

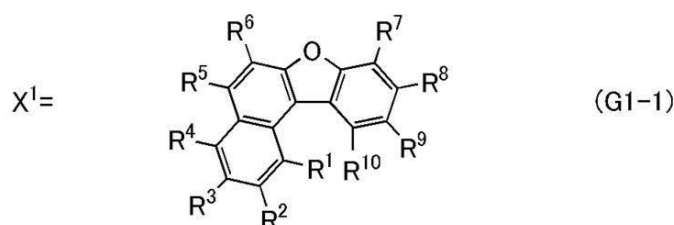
本実施の形態では、本発明の一態様である有機化合物について説明する。

【0035】

なお、本実施の形態で示す有機化合物は、ベンゾナフトフラン骨格を有する、下記一般式 (G1) で表される構造を有する。

【0036】

【化 6】



【0037】

なお、一般式 (G1) において、A は、ピレン骨格を表し、前記ピレン骨格が置換基を有する場合の置換基としては、置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基、を 2 つ有するジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを有す

る。また、前記ジアリールアミノ基が有する２つのアリール基は同じでも異なってもよい。また、一般式（Ｇ１－１）で表される X^1 において、 R^6 および R^7 の一方は、一般式（Ｇ１）中の N と結合し、前記 R^6 および R^7 の他方は、炭素数１乃至７のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数３乃至２０の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数７乃至１０の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、 Ar^1 は置換もしくは無置換の炭素数６乃至１３のアリール基を表す。また、 $R^1 \sim R^5$ および $R^8 \sim R^{10}$ はそれぞれ独立に、水素、炭素数１乃至７のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数３乃至２０の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数７乃至１０の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数６乃至１３のアリール基のいずれかを表す。 n は、１乃至４を表し、 n が２以上の場合、アミン骨格は同じであっても異なってもよい。

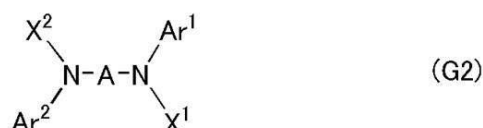
10

【００３８】

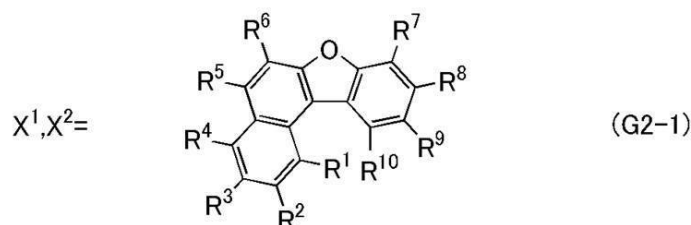
また、本実施の形態で示す有機化合物は、下記一般式（Ｇ２）で表される。

【００３９】

【化７】



20



【００４０】

30

なお、一般式（Ｇ２）において、 A は、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、一般式（Ｇ２－１）で表される X^1 および X^2 はそれぞれ独立し、 R^6 および R^7 の一方は、一般式（Ｇ２）中の N と結合し、前記 R^6 および R^7 の他方は、炭素数１乃至７のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数３乃至２０の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数７乃至１０の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数６乃至１３のアリール基を表す。また、 $R^1 \sim R^5$ および $R^8 \sim R^{10}$ はそれぞれ独立に、水素、炭素数１乃至７のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数３乃至２０の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数７乃至１０の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数６乃至１３のアリール基のいずれかを表す。

40

【００４１】

なお、上記各構成において、 R^6 および R^7 の他方は、炭素数３乃至２０の単環式飽和炭化水素基であると好ましい。さらに炭素数３乃至２０の単環式飽和炭化水素基としては、特にシクロヘキシル基が好ましい。

【００４２】

なお、本発明の別の一態様として、上記一般式（Ｇ２）において、「 A は、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、一般式（Ｇ２－１）で表される X^1 および X^2 はそれぞれ独立し、 R^6 および R^7 の一方は、一般式（Ｇ２）中の N と結合し、前記 R^6 および R^7 の他方は、炭素数３乃至１８のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数１８乃至３０のトリアリールシリル基のいずれかを表す。また、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞ

50

れ独立に置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。また、 $R_1 \sim R_5$ および $R_8 \sim R_{10}$ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。」とすることができる。

【0043】

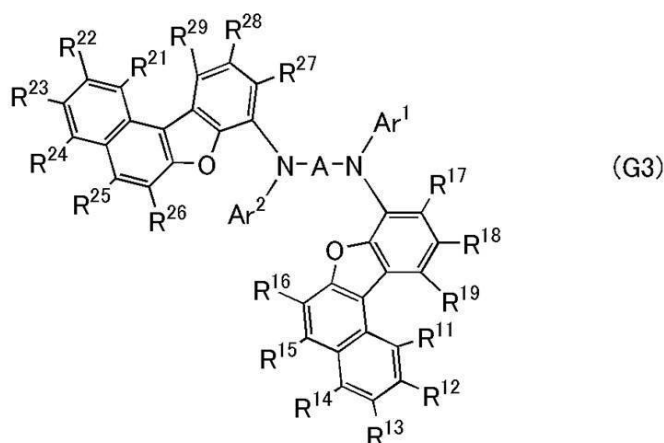
なお、一般式 (G2-1) において、 R_6 および R_7 のいずれか一方が炭素数 3 乃至 18 のトリアルキルシリル基である場合のトリアルキルシリル基の例としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリ (*n*-プロピル) シリル基、トリイソプロピルシリル基、トリ (*n*-ブチル) シリル基、トリ (*sec*-ブチル) シリル基、トリイソブチルシリル基、トリ (*tert*-ブチル) シリル基、トリ (*n*-ペンチル) シリル基、トリイソペンチルシリル基、トリ (*sec*-ペンチル) シリル基、トリ (*tert*-ペンチル) シリル基、トリネオペンチルシリル基、トリ (*n*-ヘキシル) シリル基、トリイソヘキシルシリル基、トリ (*sec*-ヘキシル) シリル基、トリ (*tert*-ヘキシル) シリル基、トリネオヘキシルシリル基、トリ (3-メチルペンチル) シリル基、トリ (2-メチルペンチル) シリル基、トリ (2-エチルブチル) シリル基、トリ (1, 2-ジメチルブチル) シリル基、トリ (2, 3-ジメチルブチル) シリル基等が挙げられ、また、置換もしくは無置換の炭素数 18 乃至 30 のトリアリールシリル基である場合のトリアリールシリル基の例としては、トリフェニルシリル基、トリ (1-ナフチル) シリル基、トリ (2-ナフチル) シリル基、トリ (オルトトリル) シリル基、トリ (メタトリル) シリル基、トリ (パラトリル) シリル基、トリメシチルシリル基、トリ (パラ-*tert*-ブチルフェニル) シリル基等が挙げられる。

【0044】

また、本実施の形態で示す有機化合物は、下記一般式 (G3) で表される。

【0045】

【化 8】



【0046】

なお、一般式 (G3) において、A は、置換もしくは無置換のピレン骨格を表す。また、 R_{16} および R_{26} は、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表し、 $R_{11} \sim R_{15}$ および $R_{17} \sim R_{19}$ および $R_{21} \sim R_{25}$ および $R_{27} \sim R_{29}$ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。

【0047】

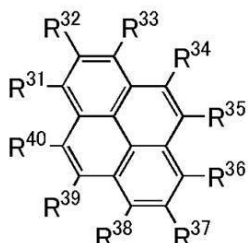
なお、上記各構成において、 R^{16} および R^{26} は、炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基であると好ましい。さらに炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基としては、特にシクロヘキシル基が好ましい。

【0048】

また、本実施の形態で示す有機化合物は、下記一般式 (G4) で表される。

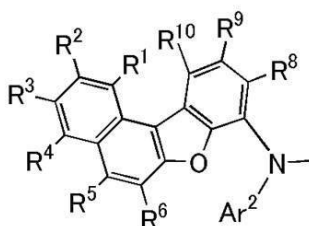
【0049】

【化9】



(G4)

10



(G4-1)

20

【0050】

なお、一般式 (G4) において、 R^{31} 、 R^{33} 、 R^{35} 、および R^{38} の少なくとも一は、一般式 (G4-1) で表される基を有し、前記 R^{31} 、 R^{33} 、 R^{35} 、および R^{38} の 2 以上が一般式 (G4-1) で表される基を有する場合、それぞれの構造は同じであっても異なっても良い。また、 R^6 は炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、 $R^{31} \sim R^{40}$ のうち一般式 (G4-1) で表される基を有さない全て、 $R^1 \sim R^5$ および $R^8 \sim R^{10}$ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリアル基のいずれかを表す。

30

【0051】

なお、上記各構成において、 R^6 は、炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基であると好ましい。さらに炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基としては、特にシクロヘキシル基が好ましい。

40

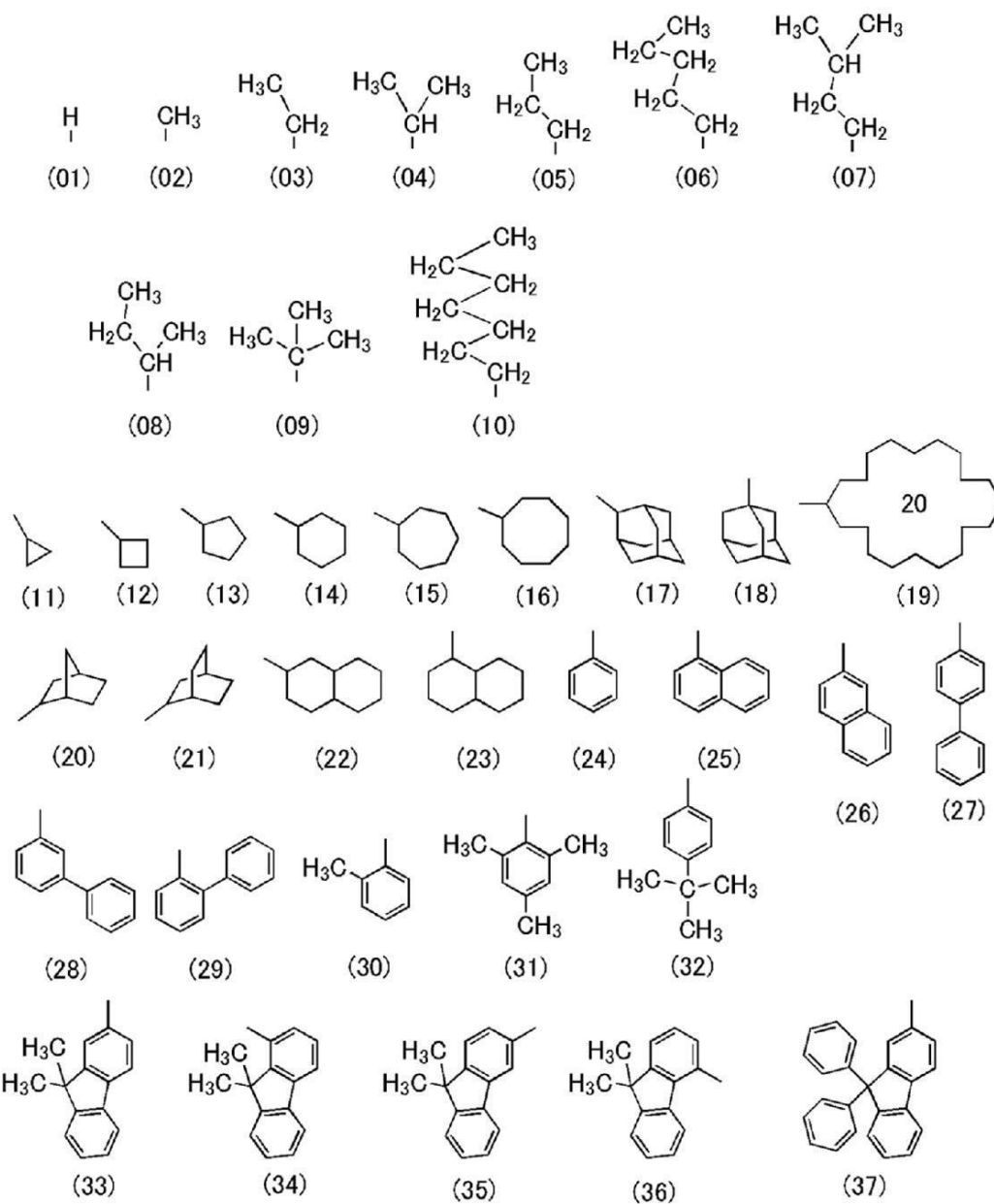
【0052】

なお、上記一般式 (G1) ~ 一般式 (G3) において、A で示されるピレン骨格が置換基を有する場合の置換基としては、置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリアル基、を 2 つ有するジアリアルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリアル基、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかが挙げられ、具体的には下記構造式 (01) ~ (58) に示すいずれかが挙げられる。

【0053】

50

【化 1 0】



10

20

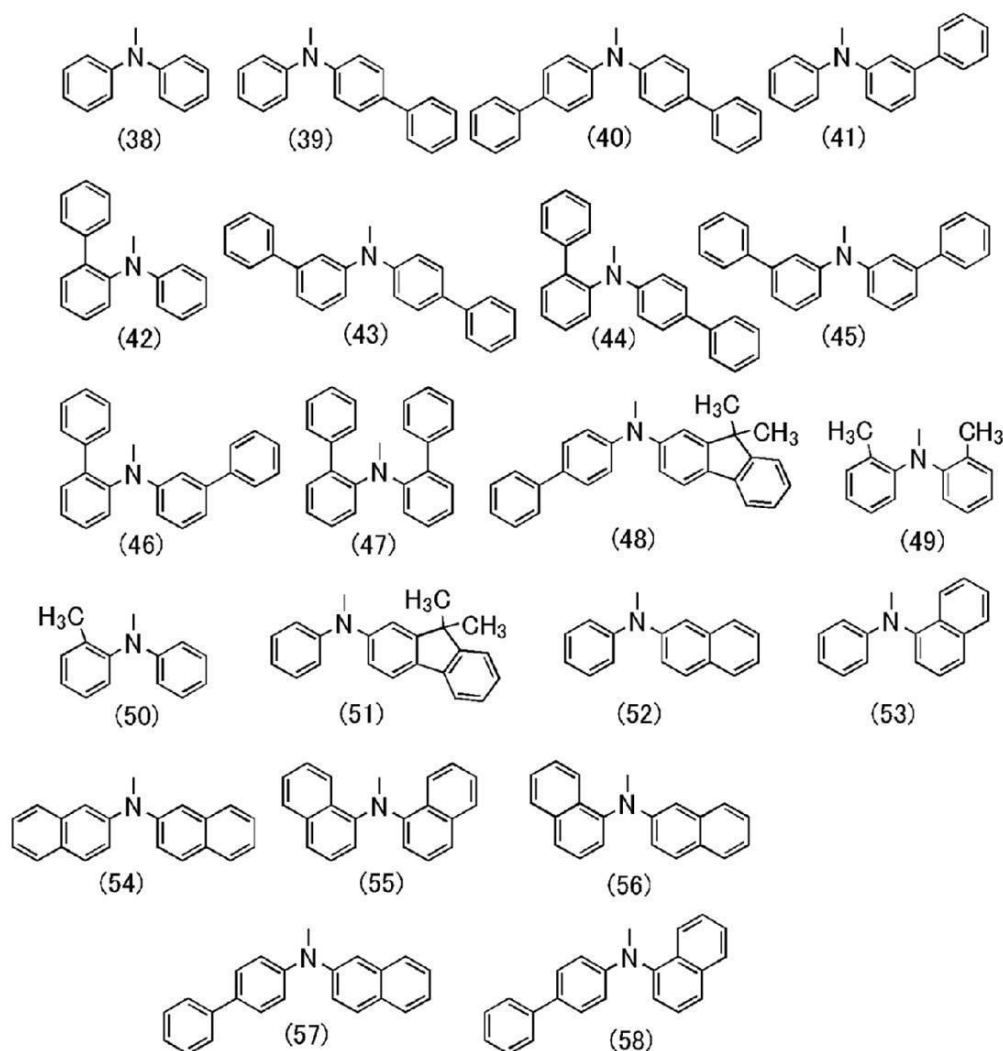
30

【 0 0 5 4】

40

50

【化 1 1】



【0055】

また、上記一般式（G1）～（G3）において、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、を2つ有するジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、または置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれか、が置換基を有する場合、該置換基としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基のような炭素数1乃至7のアルキル基や、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、8，9，10-トリノルボルナニル基、のような炭素数5～7のシクロアルキル基や、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基のような炭素数6乃至12のアリール基、等が挙げられる。

【0056】

また、上記一般式（G1）～（G4）における炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基の具体例としては、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、2-メチルシクロヘキシル基、シクロオクチル基、シクロノニル基、シクロデシル基、シクロイコシル基等が挙げられる。

【0057】

また、上記一般式（G1）～（G4）における炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基

の具体例としては、8，9，10-トリノルボルナニル基、デカヒドロナフチル基、アダマンチル基等が挙げられる。

【0058】

また、上記一般式（G1）～（G4）における炭素数6乃至13のアリール基の具体例としては、フェニル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、メシチル基、o-ビフェニル基、m-ビフェニル基、p-ビフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、フルオレニル基、9，9-ジメチルフルオレニル基等が挙げられる。

【0059】

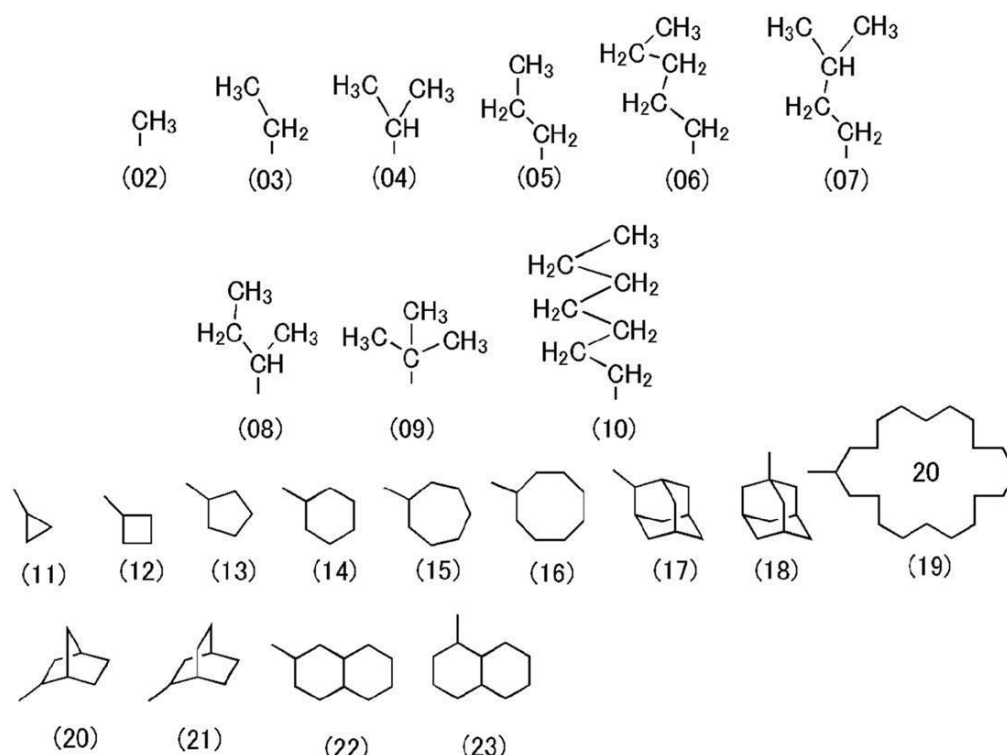
また、上記一般式（G1）～（G4）における炭素数1乃至7のアルキル基の具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、sec-ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、イソペンチル基、sec-ペンチル基、tert-ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、3-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、2-エチルブチル基、1，2-ジメチルブチル基、2，3-ジメチルブチル基、n-ヘプチル基等が挙げられる。

【0060】

また、上記一般式（G1-1）および（G2-1）における、R⁶およびR⁷の他方、または（G4-1）におけるR⁶は、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表し、その具体例としては、下記構造式（02）～（23）に示すいずれかが挙げられる。

【0061】

【化12】

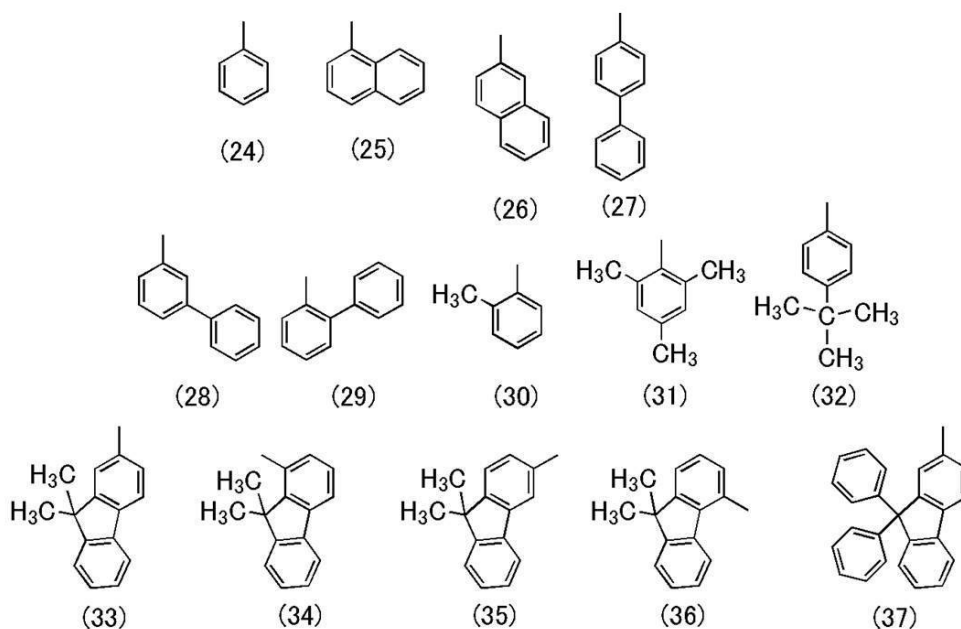


【0062】

また、上記一般式（G1）におけるAr¹、一般式（G2）におけるAr¹およびAr²、一般式（G3）におけるAr¹およびAr²、または一般式（G4）におけるAr²は、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表し、その具体例としては、下記構造式（24）～（37）に示すいずれかが挙げられる。

【0063】

【化 1 3】



10

20

【0064】

また、上記一般式（G1-1）、一般式（G2-1）、一般式（G4-1）におけるR1～R5およびR8～R10は、それぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを示し、その具体例としては、下記構造式（01）～（32）に示すいずれかが挙げられる。

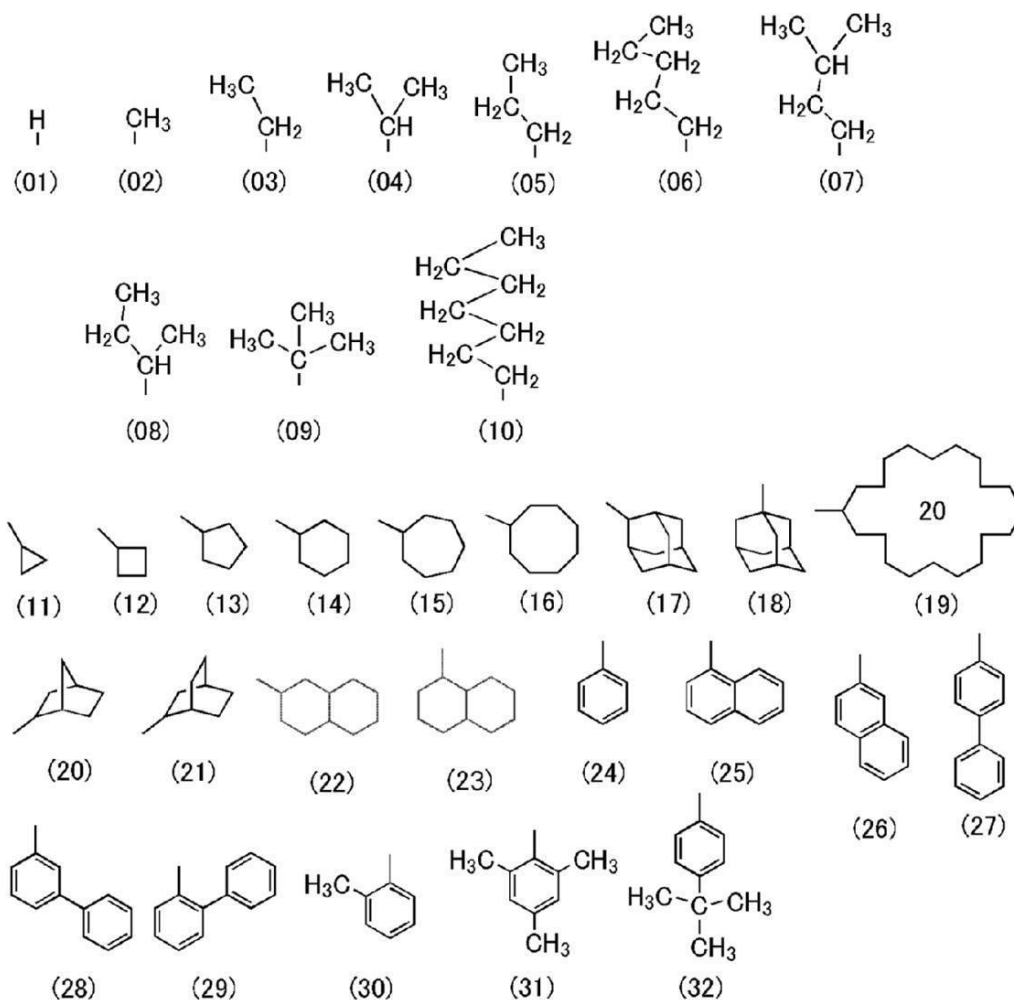
【0065】

30

40

50

【化 1 4】



10

20

30

【0066】

上述した一般式 (G 1) ~ (G 4) で示される本発明の一態様である有機化合物は、ピレン骨格にアミンが結合した構造を有し、アミンとベンゾナフトフラン骨格とが結合した構造を有する。また、ベンゾナフトフラン骨格の 6 位または 8 位のいずれか一方においてアミンと結合し、ベンゾナフトフラン骨格の 6 位または 8 位のいずれか他方（アミンとの結合を形成しない位置）は特定の置換基、すなわち、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを有することを特徴とする。なお、このような構造を有することで、発光スペクトルを狭線化させることができる。発光スペクトルを狭線化させることにより、例えば、マイクロキャビティ構造を有するトップエミッシン型の発光素子の素子特性を向上させることができる。さらにこのような材料を用いて発光素子を作製することにより、発光素子の信頼性を向上させることができる。また、このような構造とすることで、化合物の昇華性が向上するため、蒸着時の化合物の分解を低減することができる。蒸着時の分解が抑制されることで、信頼性の高い発光素子の提供が可能となる。また、上述した特定の置換基が炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基の場合、効果が顕著である上に、合成の収率も高いため好ましい。特に好ましくはシクロヘキシル基である。

40

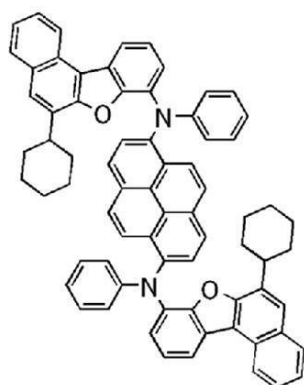
【0067】

次に、上述した本発明の一態様である有機化合物の具体的な構造式を下記に示す。ただし、本発明はこれらに限定されることはない。

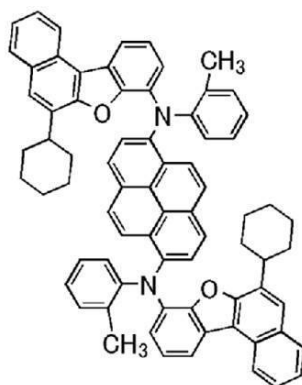
50

【 0 0 6 8 】

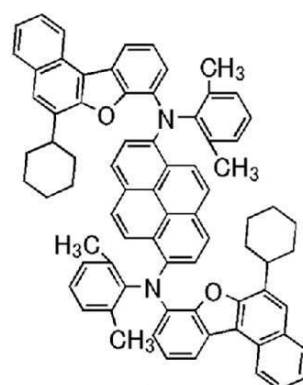
【 化 1 5 】



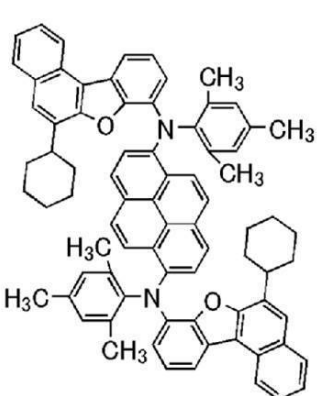
(100)



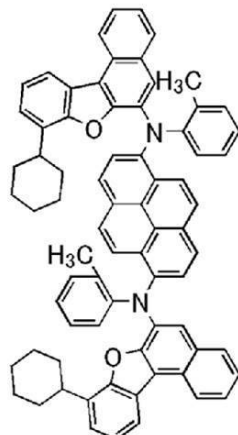
(101)



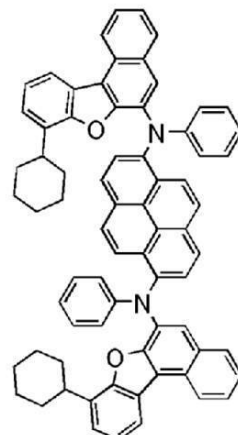
(102)



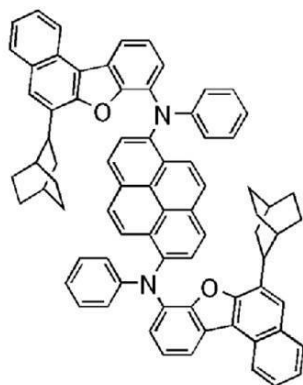
(103)



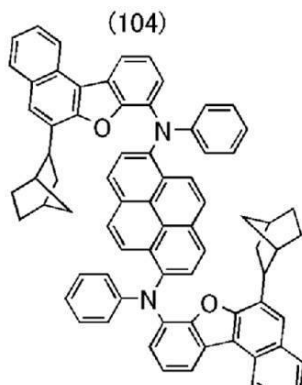
(104)



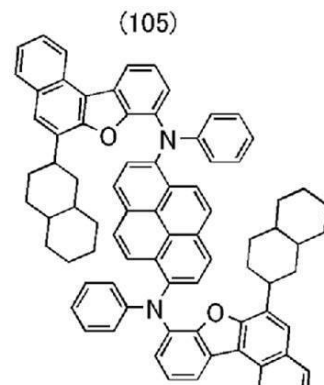
(105)



(106)



(107)



(108)

【 0 0 6 9 】

10

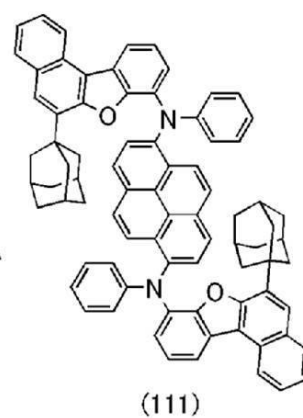
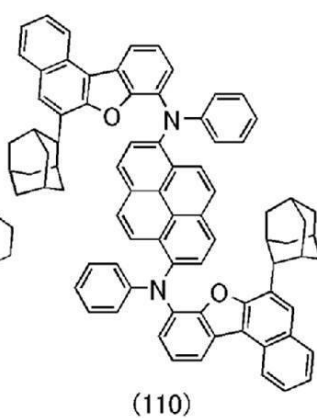
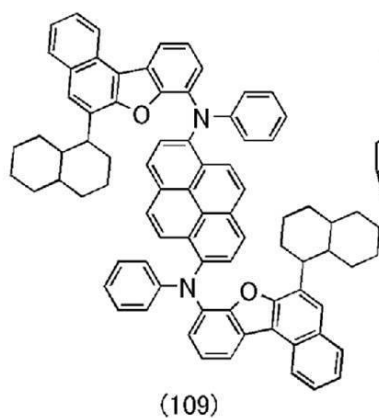
20

30

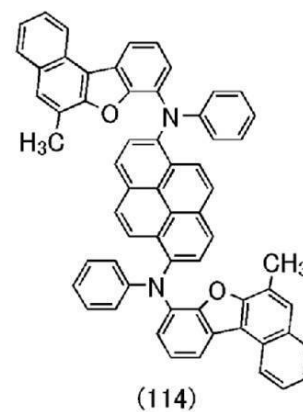
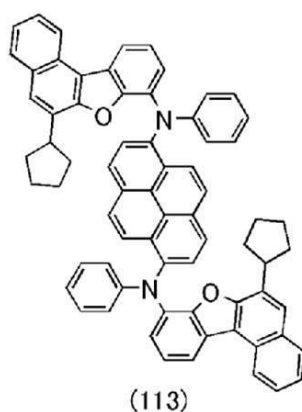
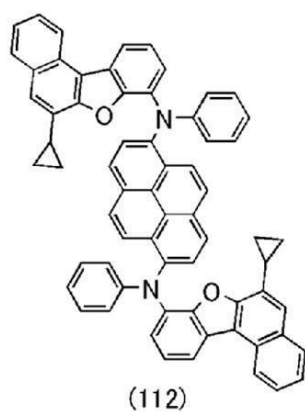
40

50

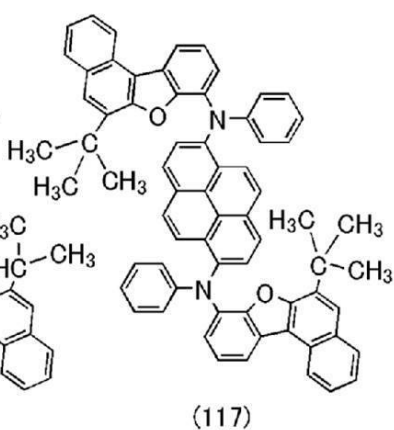
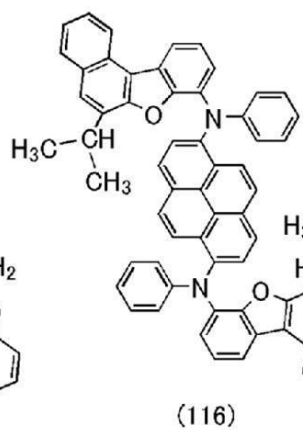
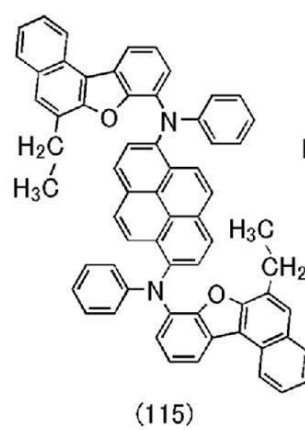
【化 1 6】



10



20



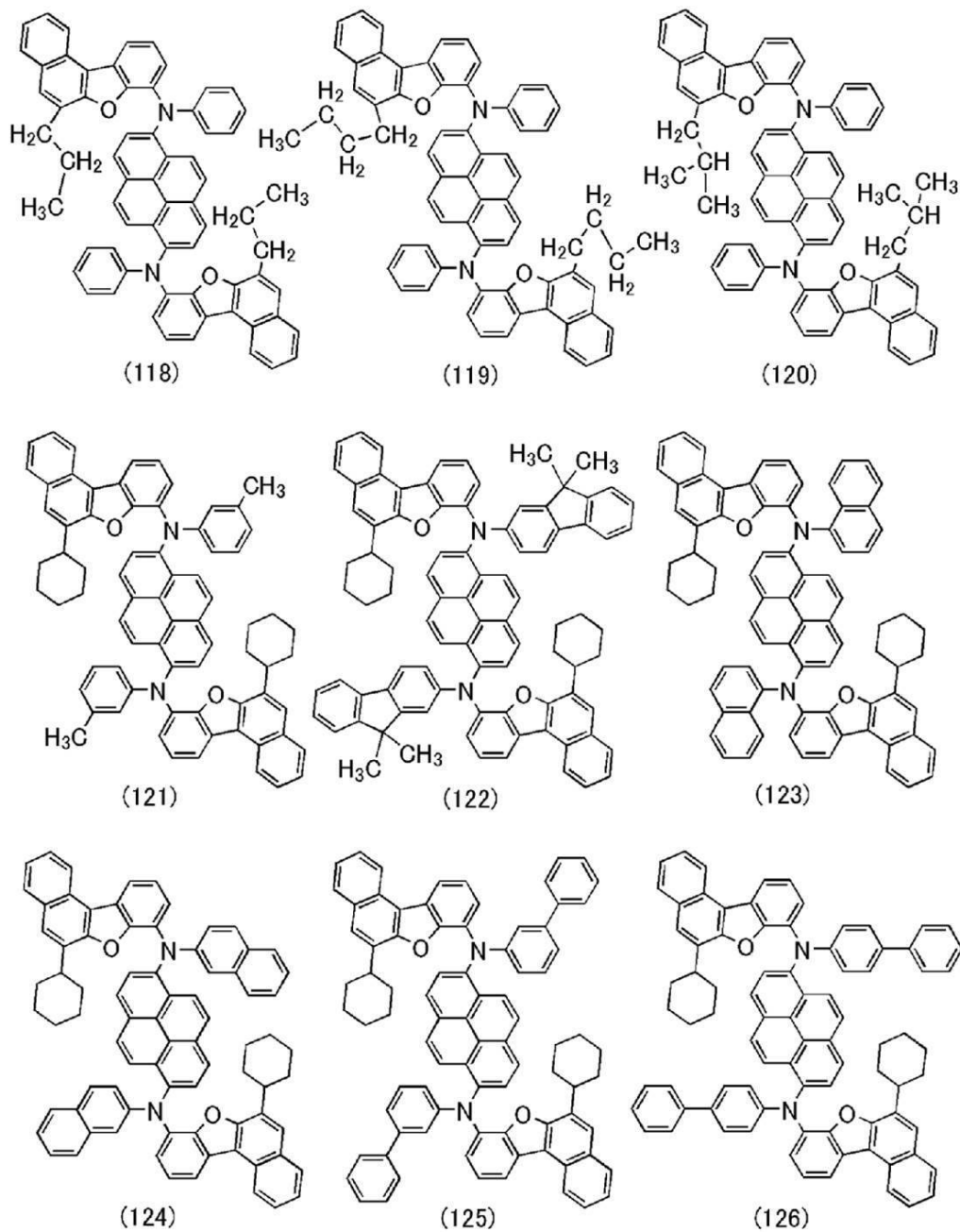
30

【 0 0 7 0】

40

50

【化 1 7】



【0071】

10

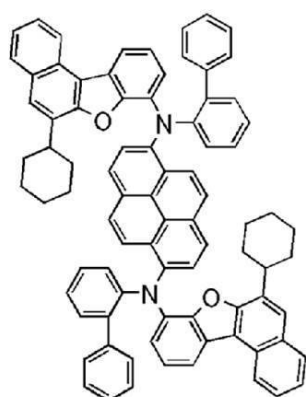
20

30

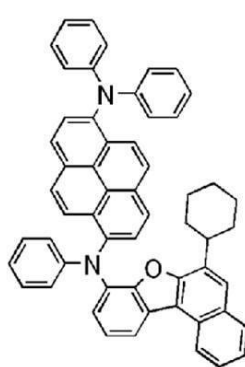
40

50

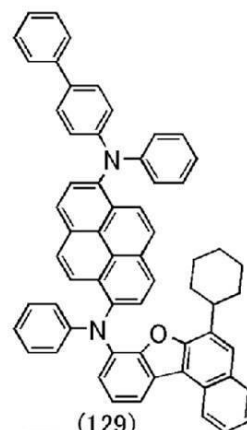
【化 1 8】



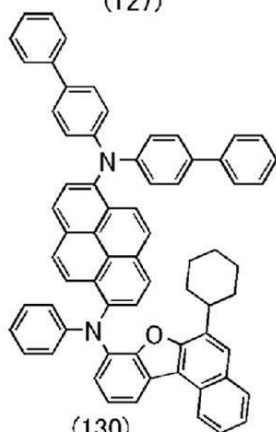
(127)



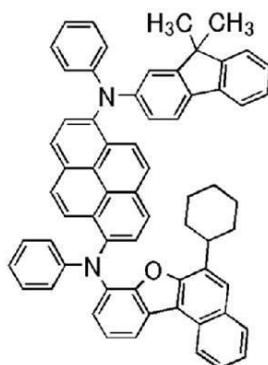
(128)



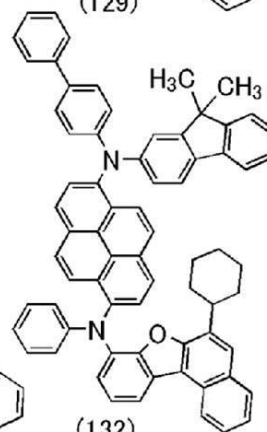
(129)



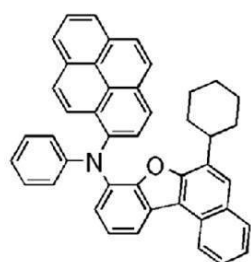
(130)



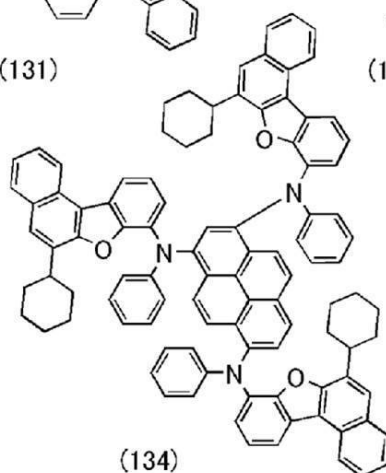
(131)



(132)



(133)



(134)

【 0 0 7 2 】

10

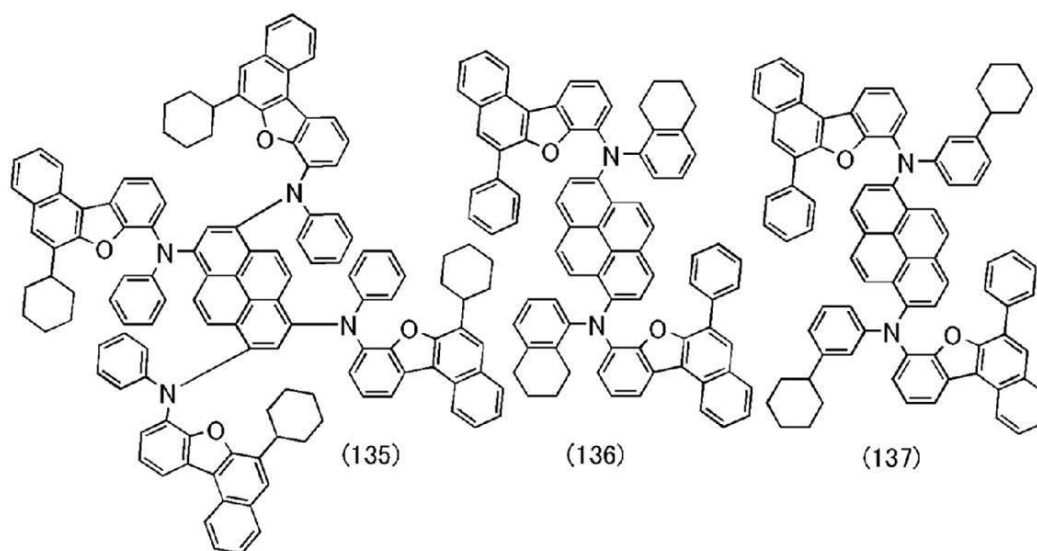
20

30

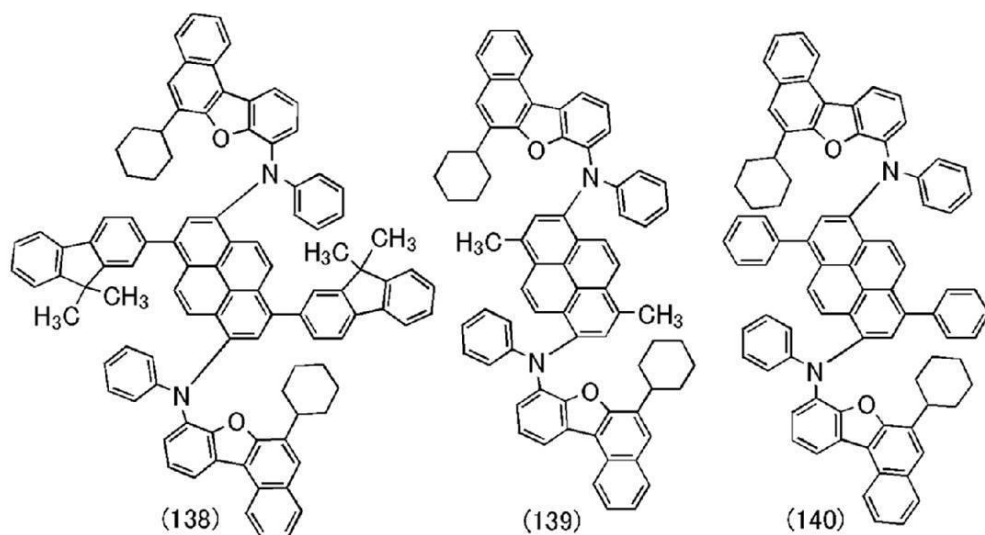
40

50

【化 1 9】



10



20

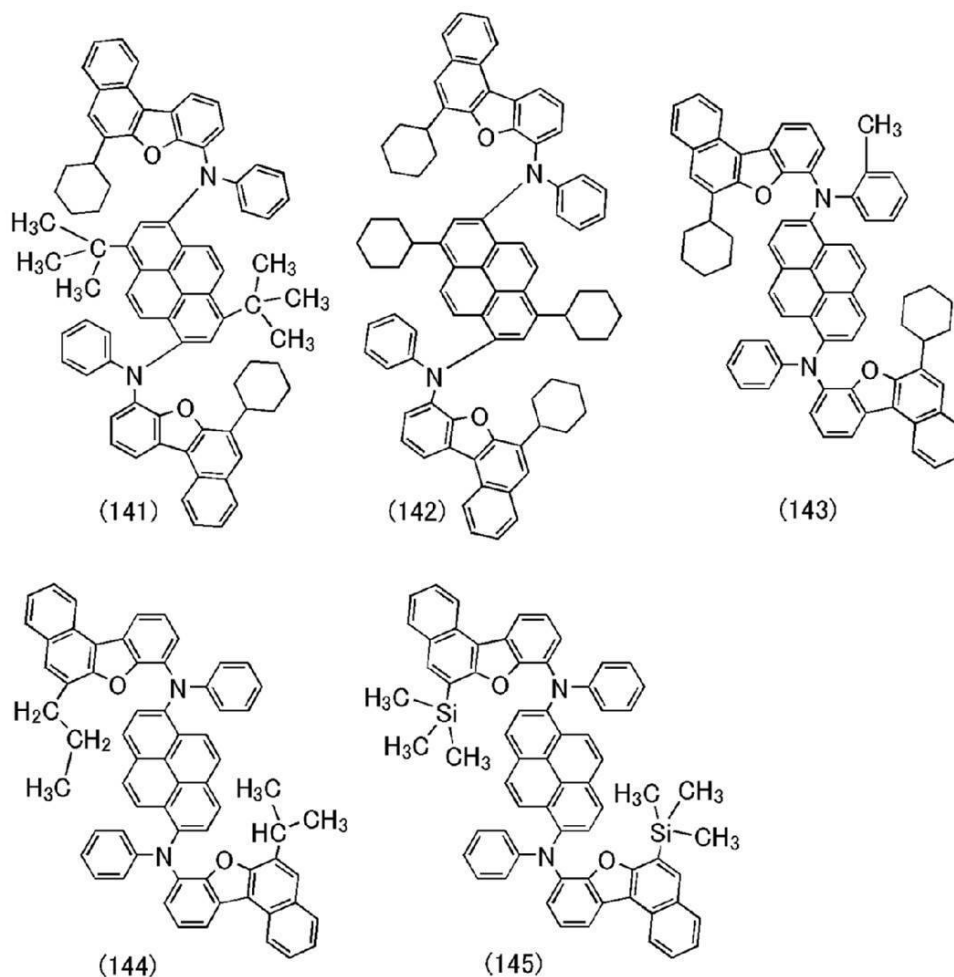
30

【 0 0 7 3 】

40

50

【化 20】



【0074】

なお、上記構造式(100)～(145)で表される有機化合物は、上記一般式(G1)～(G4)で表される有機化合物に含まれる一例であり、本発明の一態様である有機化合物は、これに限られない。

【0075】

次に、本発明の一態様であり、一般式(G1)で表される有機化合物の合成方法の一例について説明する。

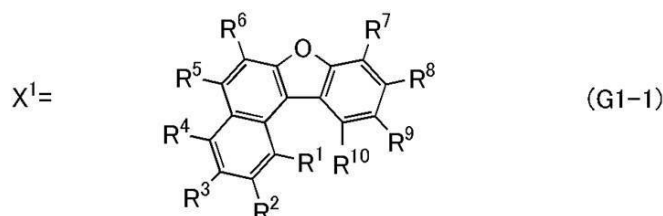
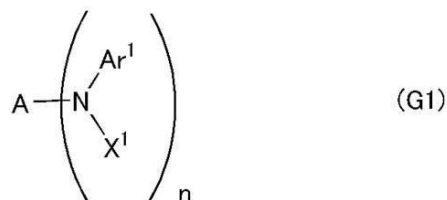
【0076】

＜一般式(G1)で表される有機化合物の合成方法＞

下記一般式(G1)で表される有機化合物の合成方法の一例について説明する。

【0077】

【化 2 1】



【0078】

一般式（G1）において、Aは、ピレン骨格を表し、前記ピレン骨格が置換基を有する場合の置換基としては、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、を2つ有するジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを有する。また、前記ジアリールアミノ基が有する2つのアリール基は、同じでも異なってもよい。また、一般式（G1-1）で表されるX¹において、R⁶およびR⁷の一方は、一般式（G1）中のNと結合し、前記R⁶およびR⁷の他方は、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹は置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。nは、1乃至4を表し、nが2以上の場合、アミン骨格は同じであっても異なってもよい。

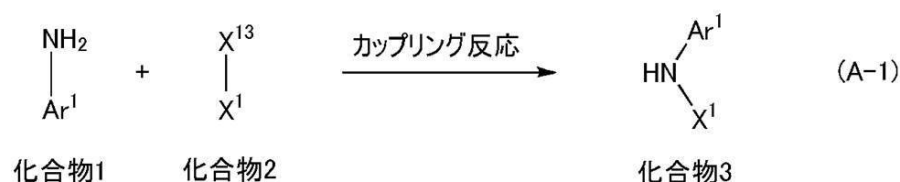
【0079】

<一般式（G1）で表される有機化合物の合成方法>

上記一般式（G1）で表される有機化合物は、種々の反応を適用した合成方法により合成することができる。例えば、下記に示す合成スキーム（A-1）および（A-2）により合成することができる。はじめに、アリールアミン（化合物1）と、ハロゲン化アリール（化合物2）とをカップリングすることにより、ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラニルアミン化合物（化合物3）を得る。ついで、ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラニルアミン化合物（化合物3）と、ピレン化合物（化合物4）とをカップリングすることにより、上記一般式（G1）で表される有機化合物を得ることができる。

【0080】

【化 2 2】



10

20

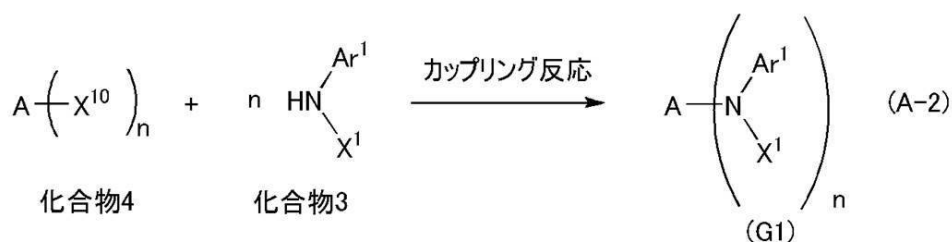
30

40

50

【0081】

【化23】



10

【0082】

なお、上記合成スキーム（A-1）および（A-2）において、Aは、ピレン骨格を表し、ピレン骨格が置換基を有する場合、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、を2つ有するジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを有する。また、ジアリールアミノ基が有する2つのアリールは同じでも異なってもよい。また、一般式（G1-1）で表されるX¹において、R⁶およびR⁷の一方は、一般式（G1）中のNと結合し、R⁶およびR⁷の他方は、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹は置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。nは、1乃至4を表し、nが2以上の場合、アミン骨格は同じであっても異なってもよい。

20

【0083】

なお、上記合成スキーム（A-1）及び（A-2）において、パラジウム触媒を用いたブッフバルト・ハートウィッグ反応を行う場合、X¹⁰はハロゲン基又はトリフラート基を表し、ハロゲンとしては、ヨウ素又は臭素又は塩素が好ましく、nが2以上の場合、異なるアミノ基をピレン骨格に結合させる場合は、X¹⁰は異なるハロゲンを用いて選択的にアミノ基を反応することが好ましい。当該反応では、ビス（ジベンジリデンアセトン）パラジウム（0）、酢酸パラジウム（II）等のパラジウム化合物と、トリ（tert-ブチル）ホスフィン、トリ（n-ヘキシル）ホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、ジ（1-アダマンチル）-n-ブチルホスフィン、2-ジシクロヘキシルホスフィノー2',6'-ジメトキシ-1,1'-ビフェニル等の配位子を用いることができる。また、ナトリウム tert-ブトキシド等の有機塩基や、炭酸カリウム、炭酸セシウム、炭酸ナトリウム等の無機塩基等を用いることができる。また、溶媒として、トルエン、キシレン、ベンゼン、テトラヒドロフラン、ジオキサン等を用いることができる。なお、当該反応で用いることができる試薬類は、これらの試薬類に限られるものではない。

30

40

【0084】

なお、上記合成スキーム（A-1）及び（A-2）において行う反応は、ブッフバルト・ハートウィッグ反応に限られるものではなく、有機錫化合物を用いた右田・小杉・スティルカップリング反応、グリニヤール試薬を用いたカップリング反応、銅、又は銅化合物を用いたウルマン反応等を用いることができる。

【0085】

なお、上記合成スキーム（A-1）において、アリールアミン（化合物1）と、ハロゲン化アリール（化合物2）とをカップリングすることにより得られる、ベンゾ[b]ナフト

50

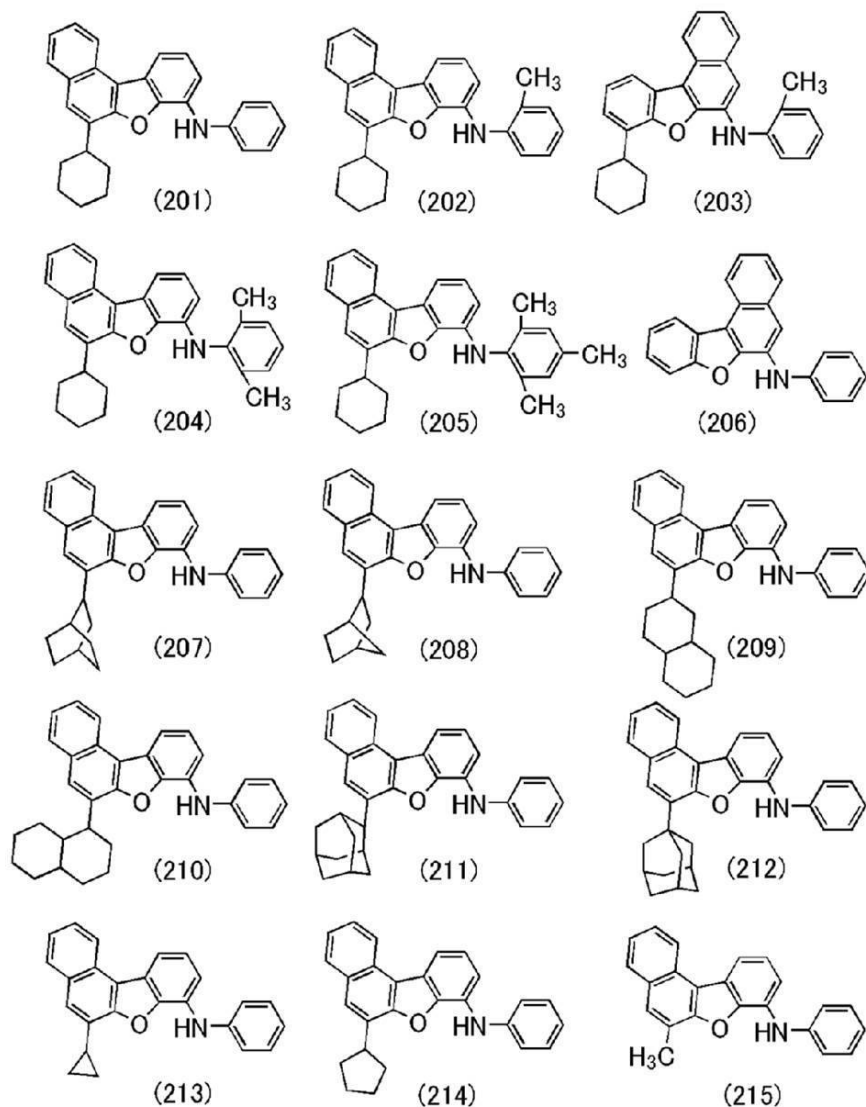
〔１，２－ｄ〕フラニルアミン化合物（化合物３）は、本発明の一態様である有機化合物を合成する際に中間体として合成される化合物であるが、本発明の一態様である有機化合物でもある。

【００８６】

なお、上記合成スキーム（Ａ－１）において示された化合物３の具体例としては、下記構造（２０１）～（２２７）に示すいずれかが挙げられる。

【００８７】

【化２４】



【００８８】

10

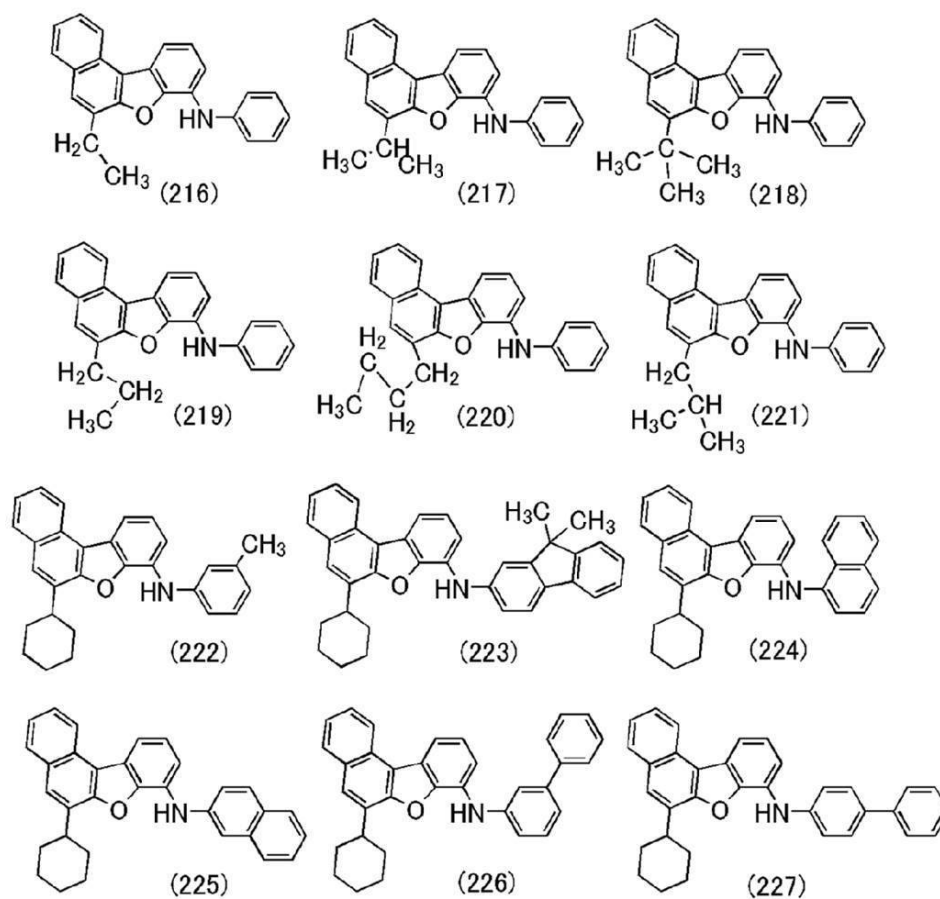
20

30

40

50

【化 2 5】



【 0 0 8 9 】

次に、本発明の一態様であり、一般式（G 2）で表される有機化合物の合成方法の一例について説明する。

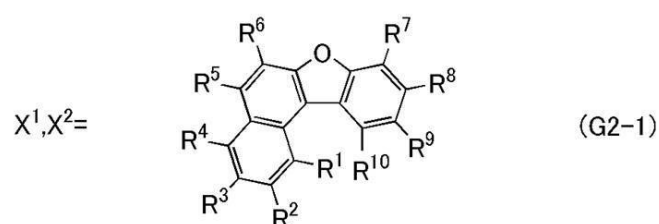
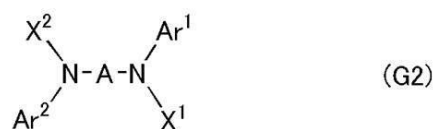
【 0 0 9 0 】

<一般式（G 2）で表される有機化合物の合成方法>

下記一般式（G 2）で表される有機化合物の合成方法の一例について説明する。

【 0 0 9 1 】

【化 2 6】



【 0 0 9 2 】

一般式 (G 2) において、A は、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、一般式 (G 2-1) で表される X¹ および X² はそれぞれ独立し、R⁶ および R⁷ の一方は、一般式 (G 2) 中の N と結合し、前記 R⁶ および R⁷ の他方は、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹ および Ar² は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。また、R¹ ~ R⁵ および R⁸ ~ R¹⁰ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。

10

【0093】

また、上記一般式 (G 2) において、「A は、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、一般式 (G 2-1) で表される X¹ および X² はそれぞれ独立し、R⁶ および R⁷ の一方は、一般式 (G 2) 中の N と結合し、前記 R⁶ および R⁷ の他方は、炭素数 3 乃至 18 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 18 乃至 30 のトリアリールシリル基のいずれかを表す。また、Ar¹ および Ar² は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。また、R¹ ~ R⁵ および R⁸ ~ R¹⁰ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。」とすることができる。

20

【0094】

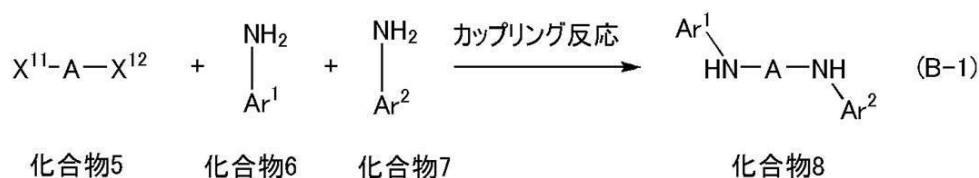
<一般式 (G 2) で表される有機化合物の合成方法>

上記一般式 (G 2) で表される有機化合物は、種々の反応を適用した合成方法により合成することができる。例えば、下記に示す合成スキーム (B-1) および (B-2) により合成することができる。はじめに、ピレン化合物 (化合物 5) と、アリールアミン (化合物 6) と、アリールアミン (化合物 7) とをカップリングすることにより、ピレンジアミン化合物 (化合物 8) を得る。ついで、ピレンジアミン化合物 (化合物 8) と、ハロゲン化アリール (化合物 2) と、ハロゲン化アリール (化合物 9) とをカップリングすることにより、上記一般式 (G 2) で表される有機化合物を得ることができる。

30

【0095】

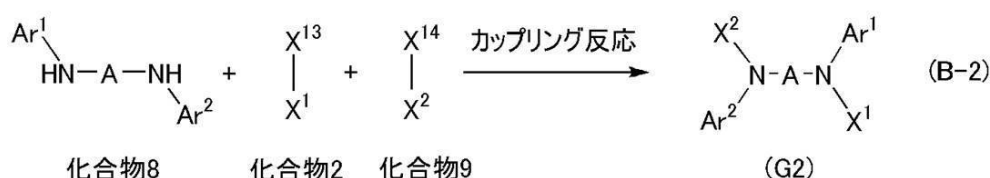
【化 27】



40

【0096】

【化 28】



50

【0097】

なお、上記合成スキーム（B-1）および（B-2）において、Aは、ピレン骨格を表し、ピレン骨格が置換基を有する場合、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、を2つ有するジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを有する。また、ジアリールアミノ基が有する2つのアリールは同じでも異なっているもよい。また、一般式（G2-1）で表されるX¹において、R⁶およびR⁷の一方は、一般式（G2）中のNと結合し、R⁶およびR⁷の他方は、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹は置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。

10

【0098】

また、上記合成スキーム（B-2）において、「Aは、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、一般式（G2-1）で表されるX¹およびX²はそれぞれ独立し、R⁶およびR⁷の一方は、一般式（G2）中のNと結合し、前記R⁶およびR⁷の他方は、炭素数3乃至18のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数18乃至30のトリアリールシリル基のいずれかを表す。また、Ar¹およびAr²は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。また、R¹～R⁵およびR⁸～R¹⁰はそれぞれ独立に、水素、炭素数1乃至7のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3乃至20の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数7乃至10の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数6乃至13のアリール基のいずれかを表す。」とすることができる。

20

【0099】

なお、上記合成スキーム（B-1）及び（B-2）において、パラジウム触媒を用いたブッフバルト・ハートウィッグ反応を行う場合、X¹¹～X¹⁴はハロゲン基又はトリフルオロ基を表し、ハロゲンとしては、ヨウ素又は臭素又は塩素が好ましい。当該反応では、ビス（ジベンジリデンアセトン）パラジウム（0）、酢酸パラジウム（II）等のパラジウム化合物と、トリ（tert-ブチル）ホスフィン、トリ（n-ヘキシル）ホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、ジ（1-アダマンチル）-n-ブチルホスフィン、2-ジシクロヘキシルホスフィノー-2', 6'-ジメトキシ-1, 1'-ビフェニル等の配位子を用いることができる。また、ナトリウム tert-ブトキシド等の有機塩基や、炭酸カリウム、炭酸セシウム、炭酸ナトリウム等の無機塩基等を用いることができる。また、溶媒として、トルエン、キシレン、ベンゼン、テトラヒドロフラン、ジオキサン等を用いることができる。なお、当該反応で用いることができる試薬類は、これらの試薬類に限られるものではない。

30

40

【0100】

また、上記合成スキーム（B-1）及び（B-2）において行う反応は、ブッフバルト・ハートウィッグ反応に限られるものではなく、有機錫化合物を用いた右田・小杉・スティルカップリング反応、グリニヤール試薬を用いたカップリング反応、銅、又は銅化合物を用いたウルマン反応等を用いることができる。

【0101】

上記合成スキーム（B-1）において、化合物6と化合物7とが異なる構造である場合、化合物5と化合物6とを先に反応させてカップリング体とし、得られたカップリング体と、化合物7とを反応させることが好ましい。なお、化合物5に対して、化合物6及び化合物7を段階的に反応させる場合は、化合物5は、ジハロゲン体であることが好ましく、X

50

1 1 及び X 1 2 は異なるハロゲンを用いて選択的に 1 つずつアミノ化反応を行うことが好ましい。

【 0 1 0 2 】

さらに合成スキーム（B-2）において、化合物 2 と化合物 9 とが異なる構造である場合、化合物 8 と化合物 2 とをまず反応させてカップリング体を得てから、さらに得られたカップリング体と化合物 9 とを反応させることが好ましい。

【 0 1 0 3 】

次に、本発明の一態様であり、一般式（G 2'）で表される有機化合物の合成方法の一例について説明する。なお、一般式（G 2'）で表される有機化合物は、上記一般式（G 2）で表される有機化合物において、X 1 と X 2 の構造が同じ場合の有機化合物を示す。

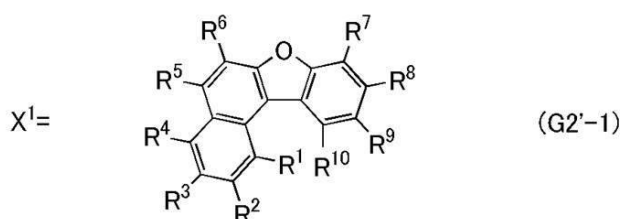
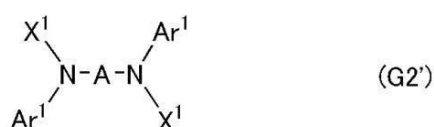
【 0 1 0 4 】

<一般式（G 2'）で表される有機化合物の合成方法>

下記一般式（G 2'）で表される有機化合物の合成方法の一例について説明する。

【 0 1 0 5 】

【化 2 9】



【 0 1 0 6 】

一般式（G 2'）において、A は、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、R⁶ および R⁷ の一方は、一般式（G 2'）中の N と結合し、前記 R⁶ および R⁷ の他方は、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹ は、置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。また、R¹ ~ R⁵ および R⁸ ~ R¹⁰ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。

【 0 1 0 7 】

また、上記一般式（G 2'）において、「A は、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、R⁶ および R⁷ の一方は、一般式（G 2'）中の N と結合し、前記 R⁶ および R⁷ の他方は、炭素数 3 乃至 18 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 18 乃至 30 のトリアリールシリル基のいずれかを表す。また、Ar¹ および Ar² は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。また、R¹ ~ R⁵ および R⁸ ~ R¹⁰ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。」とすることができる。

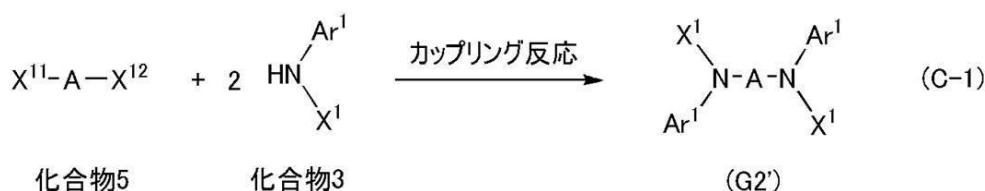
【 0 1 0 8 】

<一般式 (G 2') で表される有機化合物の合成方法>

上記一般式 (G 2') で表される有機化合物は、種々の反応を適用した合成方法により合成することができる。例えば、下記に示す合成スキーム (C-1) により合成することができる。すなわち、ピレン化合物 (化合物 5) と、ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラニルアミン化合物 (化合物 3) とをカップリングすることにより、上記一般式 (G 2') で表される有機化合物を得ることができる。

【0109】

【化30】



10

【0110】

なお、上記合成スキーム (C-1) において、A は、ピレン骨格を表し、前記ピレン骨格が置換基を有する場合、置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基、を 2 つ有するジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを有する。また、前記ジアリールアミノ基が有する 2 つのアリールは同じでも異なってもよい。また、一般式 (G 2' - 1) で表される X^1 において、R⁶ および R⁷ の一方は、一般式 (G 2') 中の N と結合し、前記 R⁶ および R⁷ の他方は、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基のいずれかを表す。また、Ar¹ は置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。また、R¹ ~ R⁵ および R⁸ ~ R¹⁰ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。

20

30

【0111】

また、上記合成スキーム (C-1) において、「A は、置換もしくは無置換のピレン骨格を表し、R⁶ および R⁷ の一方は、一般式 (G 2') 中の N と結合し、前記 R⁶ および R⁷ の他方は、炭素数 3 乃至 18 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 18 乃至 30 のトリアリールシリル基のいずれかを表す。また、Ar¹ は置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。また、R¹ ~ R⁵ および R⁸ ~ R¹⁰ はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 7 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 乃至 20 の単環式飽和炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 7 乃至 10 の多環式飽和炭化水素基、または置換もしくは無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基のいずれかを表す。」とすることができる。

40

【0112】

なお、上記合成スキーム (C-1) において、パラジウム触媒を用いたブッフバルト・ハートウィッグ反応を行う場合、X¹¹ 及び X¹² はハロゲン基又はトリフラート基を表し、ハロゲンとしては、ヨウ素又は臭素又は塩素が好ましく、同じアミノ基をピレン骨格に結合させるため、X¹¹ 及び X¹² は同じであることが好ましい。当該反応では、ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0)、酢酸パラジウム (II) 等のパラジウム化合物と、トリ (tert-ブチル) ホスフィン、トリ (n-ヘキシル) ホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、ジ (1-アダマンチル) -n-ブチルホスフィン、2-ジシ

50

クロヘキシルホスフィノー２’，６’－ジメトキシ－１，１’－ビフェニル等の配位子を用いる事ができる。また、ナトリウム *tert*-ブトキシド等の有機塩基や、炭酸カリウム、炭酸セシウム、炭酸ナトリウム等の無機塩基等を用いることができる。また、溶媒として、トルエン、キシレン、ベンゼン、テトラヒドロフラン、ジオキサン等を用いることができる。なお、当該反応で用いることができる試薬類は、これらの試薬類に限られるものではない。

【０１１３】

また、上記合成スキーム（Ｃ－１）において行う反応は、ブッフバルト・ハートウィッグ反応に限られるものではなく、有機錫化合物を用いた右田・小杉・スティルカップリング反応、グリニヤール試薬を用いたカップリング反応、銅、又は銅化合物を用いたウルマン反応等を用いることができる。

10

【０１１４】

以上、本発明の一態様であり、一般式（Ｇ１）、一般式（Ｇ２）、および一般式（Ｇ２’）で表される有機化合物の合成方法について説明したが、本発明はこれに限定されることはなく、他の合成方法によって合成してもよい。

【０１１５】

また、本発明の一態様である有機化合物を用いることで、発光効率の高い発光素子、発光装置、電子機器、または照明装置を実現することができる。また、消費電力が低い発光素子、発光装置、電子機器、または照明装置を実現することができる。

20

【０１１６】

なお、本実施の形態において、本発明の一態様について述べた。また、他の実施の形態において、本発明の一態様について述べる。ただし、本発明の一態様は、これらに限定されない。つまり、本実施の形態および他の実施の形態では、様々な発明の態様が記載されているため、本発明の一態様は、特定の態様に限定されない。

【０１１７】

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

【０１１８】

（実施の形態２）

本実施の形態では、実施の形態１で示した有機化合物を用いた発光素子について図１を用いて説明する。

30

【０１１９】

＜発光素子の基本的な構造＞

まず、発光素子の基本的な構造について説明する。図１（Ａ）には、一対の電極間に発光層を含むＥＬ層を有する発光素子を示す。具体的には、第１の電極１０１と第２の電極１０２との間にＥＬ層１０３が挟まれた構造を有する。

【０１２０】

また、図１（Ｂ）には、一対の電極間に複数（図１（Ｂ）では、２層）のＥＬ層（１０３ａ、１０３ｂ）を有し、ＥＬ層の間に電荷発生層１０４を有する積層構造（タンデム構造）の発光素子を示す。タンデム構造の発光素子は、低電圧駆動が可能で消費電力が低い発光装置を実現することができる。

40

【０１２１】

電荷発生層１０４は、第１の電極１０１と第２の電極１０２に電圧を印加したときに、一方のＥＬ層（１０３ａまたは１０３ｂ）に電子を注入し、他方のＥＬ層（１０３ｂまたは１０３ａ）に正孔を注入する機能を有する。従って、図１（Ｂ）において、第１の電極１０１に第２の電極１０２よりも電位が高くなるように電圧を印加すると、電荷発生層１０４からＥＬ層１０３ａに電子が注入され、ＥＬ層１０３ｂに正孔が注入されることとなる。

【０１２２】

なお、電荷発生層１０４は、光の取り出し効率の点から、可視光に対して透光性を有する（具体的には、電荷発生層１０４に対する可視光の透過率が、４０％以上）ことが好まし

50

い。また、電荷発生層 104 は、第 1 の電極 101 や第 2 の電極 102 よりも低い導電率であっても機能する。

【0123】

また、図 1 (C) には、本発明の一態様である発光素子の EL 層 103 の積層構造を示す。但し、この場合、第 1 の電極 101 は陽極として機能するものとする。EL 層 103 は、第 1 の電極 101 上に、正孔（ホール）注入層 111、正孔（ホール）輸送層 112、発光層 113、電子輸送層 114、電子注入層 115 が順次積層された構造を有する。なお、図 1 (B) に示すタンデム構造のように複数の EL 層を有する場合であっても、各 EL 層が、陽極側から上記のように順次積層される構造とする。また、第 1 の電極 101 が陰極で、第 2 の電極 102 が陽極の場合は、積層順は逆になる。

10

【0124】

EL 層 (103、103a、103b) に含まれる発光層 113 は、それぞれ発光物質や複数の物質を適宜組み合わせ有しており、所望の発光色を呈する蛍光発光や燐光発光が得られる構成とすることができる。また、発光層 113 を発光色の異なる積層構造としてもよい。なお、この場合、積層された各発光層に用いる発光物質やその他の物質は、それぞれ異なる材料を用いればよい。また、図 1 (B) に示す複数の EL 層 (103a、103b) から、それぞれ異なる発光色が得られる構成としても良い。この場合も各発光層に用いる発光物質やその他の物質を異なる材料とすればよい。

【0125】

また、本発明の一態様である発光素子において、例えば、図 1 (C) に示す第 1 の電極 101 を反射電極とし、第 2 の電極 102 を半透過・半反射電極とし、微小光共振器（マイクロキャビティ）構造とすることにより、EL 層 103 に含まれる発光層 113 から得られる発光を両電極間で共振させ、第 2 の電極 102 から得られる発光を強めることができる。

20

【0126】

なお、発光素子の第 1 の電極 101 が、反射性を有する導電性材料と透光性を有する導電性材料（透明導電膜）との積層構造からなる反射電極である場合、透明導電膜の膜厚を制御することにより光学調整を行うことができる。具体的には、発光層 113 から得られる光の波長 λ に対して、第 1 の電極 101 と、第 2 の電極 102 との電極間距離が $m\lambda/2$ （ただし、 m は自然数）近傍となるように調整するのが好ましい。

30

【0127】

また、発光層 113 から得られる所望の光（波長： λ ）を増幅させるために、第 1 の電極 101 から発光層 113 の所望の光が得られる領域（発光領域）までの光学距離と、第 2 の電極 102 から発光層 113 の所望の光が得られる領域（発光領域）までの光学距離と、をそれぞれ $(2m' + 1)\lambda/4$ （ただし、 m' は自然数）近傍となるように調節するのが好ましい。なお、ここでいう発光領域とは、発光層 113 における正孔（ホール）と電子との再結合領域を示す。

【0128】

このような光学調整を行うことにより、発光層 113 から得られる特定の単色光のスペクトルを狭線化させ、色純度の良い発光を得ることができる。

40

【0129】

但し、上記の場合、第 1 の電極 101 と第 2 の電極 102 との光学距離は、厳密には第 1 の電極 101 における反射領域から第 2 の電極 102 における反射領域までの総厚とすることができる。しかし、第 1 の電極 101 や第 2 の電極 102 における反射領域を厳密に決定することは困難であるため、第 1 の電極 101 と第 2 の電極 102 の任意の位置を反射領域と仮定することで十分に上述の効果を得ることができるものとする。また、第 1 の電極 101 と、所望の光が得られる発光層との光学距離は、厳密には第 1 の電極 101 における反射領域と、所望の光が得られる発光層における発光領域との光学距離であるといえることができる。しかし、第 1 の電極 101 における反射領域や、所望の光が得られる発光層における発光領域を厳密に決定することは困難であるため、第 1 の電極 101 の任意

50

の位置を反射領域、所望の光が得られる発光層の任意の位置を発光領域と仮定することで十分に上述の効果を得ることができるものとする。

【0130】

図1(C)に示す発光素子は、マイクロキャビティ構造を有するため、同じEL層を有していても異なる波長の光(単色光)を取り出すことができる。従って、異なる発光色を得るための塗り分け(例えば、RGB)が不要となる。従って、高精細化を実現することが容易である。また、着色層(カラーフィルタ)との組み合わせも可能である。さらに、特定波長の正面方向の発光強度を強めることが可能となるため、低消費電力化を図ることができる。

【0131】

図1(E)に示す発光素子は、図1(B)に示したタンデム構造の発光素子の一例であり、図に示すように、3つのEL層(103a、103b、103c)が電荷発生層(104a、104b)を挟んで積層される構造を有する。なお、3つのEL層(103a、103b、103c)は、それぞれに発光層(113a、113b、113c)を有しており、各発光層の発光色は、自由に組み合わせることができる。例えば、発光層113aを青色、発光層113bを赤色、緑色、または黄色のいずれか、発光層113cを青色とすることができるが、発光層113aを赤色、発光層113bを青色、緑色、または黄色のいずれか、発光層113cを赤色とすることもできる。

【0132】

なお、上述した本発明の一態様である発光素子において、第1の電極101と第2の電極102の少なくとも一方は、透光性を有する電極(透明電極、半透過・半反射電極など)とする。透光性を有する電極が透明電極の場合、透明電極の可視光の透過率は、40%以上とする。また、半透過・半反射電極の場合、半透過・半反射電極の可視光の反射率は、20%以上80%以下、好ましくは40%以上70%以下とする。また、これらの電極は、抵抗率が $1 \times 10^{-2} \Omega \text{cm}$ 以下とするのが好ましい。

【0133】

また、上述した本発明の一態様である発光素子において、第1の電極101と第2の電極102の一方が、反射性を有する電極(反射電極)である場合、反射性を有する電極の可視光の反射率は、40%以上100%以下、好ましくは70%以上100%以下とする。また、この電極は、抵抗率が $1 \times 10^{-2} \Omega \text{cm}$ 以下とするのが好ましい。

【0134】

＜発光素子の具体的な構造および作製方法＞

次に、本発明の一態様である発光素子の具体的な構造および作製方法について、図1を用いて説明する。また、ここでは、図1(B)に示すタンデム構造を有し、マイクロキャビティ構造を備えた発光素子についても図1(D)を用いて説明する。図1(D)に示す発光素子がマイクロキャビティ構造を有する場合は、第1の電極101を反射電極として形成し、第2の電極102を半透過・半反射電極として形成する。従って、所望の電極材料を単数または複数用い、単層または積層して形成することができる。なお、第2の電極102は、EL層103bを形成した後、上記と同様に材料を選択して形成する。また、これらの電極の作製には、スパッタ法や真空蒸着法を用いることができる。

【0135】

＜第1の電極および第2の電極＞

第1の電極101および第2の電極102を形成する材料としては、上述した両電極の機能が満たせるのであれば、以下に示す材料を適宜組み合わせる用いることができる。例えば、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適宜用いることができる。具体的には、In-Sn酸化物(ITOともいう)、In-Si-Sn酸化物(ITSOともいう)、In-Zn酸化物、In-W-Zn酸化物が挙げられる。その他、アルミニウム(Al)、チタン(Ti)、クロム(Cr)、マンガン(Mn)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、ニッケル(Ni)、銅(Cu)、ガリウム(Ga)、亜鉛(Zn)、インジウム(In)、スズ(Sn)、モリブデン(Mo)、タンタル(Ta)、タングス

10

20

30

40

50

テン (W)、パラジウム (Pd)、金 (Au)、白金 (Pt)、銀 (Ag)、イットリウム (Y)、ネオジム (Nd) などの金属、およびこれらを適宜組み合わせることもできる。その他、上記例示のない元素周期表の第 1 族または第 2 族に属する元素 (例えば、リチウム (Li)、セシウム (Cs)、カルシウム (Ca)、ストロンチウム (Sr))、ユウロピウム (Eu)、イッテルビウム (Yb) などの希土類金属およびこれらを適宜組み合わせることもできる、その他グラフェン等を用いることができる。

【0136】

図 1 (D) に示す発光素子において、第 1 の電極 101 が陽極である場合、第 1 の電極 101 上に EL 層 103 a の正孔注入層 111 a および正孔輸送層 112 a が真空蒸着法により順次積層形成される。EL 層 103 a および電荷発生層 104 が形成された後、電荷発生層 104 上に EL 層 103 b の正孔注入層 111 b および正孔輸送層 112 b が同様に順次積層形成される。

10

【0137】

<正孔注入層および正孔輸送層>

正孔注入層 (111、111 a、111 b) は、陽極である第 1 の電極 101 や電荷発生層 (104) から EL 層 (103、103 a、103 b) に正孔 (ホール) を注入する層であり、正孔注入性の高い材料を含む層である。

【0138】

正孔注入性の高い材料としては、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、タングステン酸化物、マンガン酸化物等の遷移金属酸化物が挙げられる。その他、フタロシアニン (略称: H_2Pc) 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)、N, N'-ビス {4-[ビス (3-メチルフェニル) アミノ] 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: DNTPD) 等の芳香族アミン化合物、またはポリ (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) (略称: PEDOT/PSS) 等の高分子等を用いることができる。

20

【0139】

また、正孔注入性の高い材料としては、正孔輸送性材料とアクセプター性材料 (電子受容性材料) を含む複合材料を用いることもできる。この場合、アクセプター性材料により正孔輸送性材料から電子が引き抜かれて正孔注入層 (111、111 a、111 b) で正孔が発生し、正孔輸送層 (112、112 a、112 b) を介して発光層 (113、113 a、113 b) に正孔が注入される。なお、正孔注入層 (111、111 a、111 b) は、正孔輸送性材料とアクセプター性材料 (電子受容性材料) を含む複合材料からなる単層で形成しても良いが、正孔輸送性材料とアクセプター性材料 (電子受容性材料) とをそれぞれ別の層で積層して形成しても良い。

30

【0140】

正孔輸送層 (112、112 a、112 b) は、正孔注入層 (111、111 a、111 b) によって、第 1 の電極 101 や電荷発生層 (104) から注入された正孔を発光層 (113、113 a、113 b) に輸送する層である。なお、正孔輸送層 (112、112 a、112 b) は、正孔輸送性材料を含む層である。正孔輸送層 (112、112 a、112 b) に用いる正孔輸送性材料は、特に正孔注入層 (111、111 a、111 b) の HOMO 準位と同じ、あるいは近い HOMO 準位を有するものを用いることが好ましい。

40

【0141】

正孔注入層 (111、111 a、111 b) に用いるアクセプター性材料としては、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用いることができる。具体的には、酸化モリブデン、酸化バナジウム、酸化ニオブ、酸化タンタル、酸化クロム、酸化タングステン、酸化マンガン、酸化レニウムが挙げられる。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。その他、キノジメタン誘導体やクロラニル誘導体、ヘキサアザトリフェニレン誘導体などの有機アクセプターを

50

用いることができる。具体的には、7, 7, 8, 8-テトラシアノー-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、2, 3, 6, 7, 10, 11-ヘキサシアノー-1, 4, 5, 8, 9, 12-ヘキサアザトリフェニレン（略称：HAT-CN）等を用いることができる。

【0142】

正孔注入層（111、111a、111b）および正孔輸送層（112、112a、112b）に用いる正孔輸送性材料としては、10⁻⁶ cm²/Vs以上の正孔移動度を有する物質が好ましい。なお、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ることができる。

【0143】

正孔輸送性材料としては、π電子過剰型複素芳香族化合物（例えばカルバゾール誘導体やインドール誘導体）や芳香族アミン化合物が好ましく、具体例としては、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：NPBまたはα-NPD）、N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン（略称：TPD）、4, 4'-ビス[N-(スピロ-9, 9'-ビフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：BSPB）、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン（略称：BPAPFP）、4-フェニル-3'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン（略称：mBPAPFP）、4-フェニル-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBA1BP）、3-[4-(9-フェナントリル)-フェニル]-9-フェニル-9H-カルバゾール（略称：PCPPn）、N-(4-ビフェニル)-N-(9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-9-フェニル-9H-カルバゾール-3-アミン（略称：PCBiF）、N-(1, 1'-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミン（略称：PCBBiF）、4, 4'-ジフェニル-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBBi1BP）、4-(1-ナフチル)-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBANB）、4, 4'-ジ(1-ナフチル)-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBNBB）、9, 9-ジメチル-N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]フルオレン-2-アミン（略称：PCBAF）、N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]スピロ-9, 9'-ビフルオレン-2-アミン（略称：PCBASF）、4, 4', 4''-トリス(カルバゾール-9-イル)トリフェニルアミン（略称：TCTA）、4, 4', 4''-トリス(N, N-ジフェニルアミノ)トリフェニルアミン（略称：TDATA）、4, 4', 4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン（略称：MTDATA）などの芳香族アミン骨格を有する化合物、1, 3-ビス(N-カルバゾリル)ベンゼン（略称：mCP）、4, 4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル（略称：CBP）、3, 6-ビス(3, 5-ジフェニルフェニル)-9-フェニルカルバゾール（略称：CzTP）、3, 3'-ビス(9-フェニル-9H-カルバゾール)（略称：PCCP）、3-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzPCA1）、3, 6-ビス[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzPCA2）、3-[N-(1-ナフチル)-N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)アミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzPCN1）、1, 3, 5-トリス[4-(N-カルバゾリル)フェニル]ベンゼン（略称：TCPB）、9-[4-(10-フェニル-9-アントラセニル)フェニル]-9H-カルバゾール（略称：CzPA）などのカルバゾール骨格を有する化合物、4, 4', 4''-(ベンゼン-1, 3, 5-トリイル)トリ(ジベンゾチオフェン)（略称：DBT3P-II）、2, 8-ジフェニル-4-[4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-

10

20

30

40

50

イル) フェニル] ジベンゾチオフェン (略称: DBTFLP-III)、4-[4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル) フェニル]-6-フェニルジベンゾチオフェン (略称: DBTFLP-IV) などのチオフェン骨格を有する化合物、4, 4', 4''-(ベンゼン-1, 3, 5-トリイル) トリ (ジベンゾフラン) (略称: DBF3P-III)、4-{3-[3-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル) フェニル] フェニル} ジベンゾフラン (略称: mmDBFFLB-III) などのフラン骨格を有する化合物が挙げられる。

【0144】

さらに、ポリ (N-ビニルカルバゾール) (略称: PVK)、ポリ (4-ビニルトリフェニルアミン) (略称: PVTPA)、ポリ [N-(4-{N'-[4-(4-ジフェニルアミノ) フェニル] フェニル-N'-フェニルアミノ} フェニル) メタクリルアミド] (略称: PTPDMA)、ポリ [N, N'-ビス (4-ブチルフェニル) -N, N'-ビス (フェニル) ベンジジン] (略称: Poly-TPD) などの高分子化合物を用いることもできる。

10

【0145】

但し、正孔輸送性材料は、上記に限られることなく公知の様々な材料を1種または複数種組み合わせて正孔輸送性材料として正孔注入層 (111、111a、111b) および正孔輸送層 (112、112a、112b) に用いることができる。なお、正孔輸送層 (112、112a、112b) は、各々複数の層から形成されていても良い。すなわち、例えば第1の正孔輸送層と第2の正孔輸送層とが積層されていても良い。

20

【0146】

図1 (D) に示す発光素子においては、EL層103aの正孔輸送層112a上に発光層113aが真空蒸着法により形成される。また、EL層103aおよび電荷発生層104が形成された後、EL層103bの正孔輸送層112b上に発光層113bが真空蒸着法により形成される。

【0147】

<発光層>

発光層 (113、113a、113b、113c) は、発光物質を含む層である。なお、発光物質としては、青色、紫色、青紫色、緑色、黄緑色、黄色、橙色、赤色などの発光色を呈する物質を適宜用いる。また、複数の発光層 (113a、113b、113c) に異なる発光物質を用いることにより異なる発光色を呈する構成 (例えば、補色の関係にある発光色を組み合わせ得られる白色発光) とすることができる。さらに、一つの発光層が異なる発光物質を有する積層構造であっても良い。

30

【0148】

また、発光層 (113、113a、113b、113c) は、発光物質 (ゲスト材料) に加えて、1種または複数種の有機化合物 (ホスト材料、アシスト材料) を有していても良い。また、1種または複数種の有機化合物としては、本実施の形態で説明する正孔輸送性材料や電子輸送性材料の一方または両方を用いることができる。

【0149】

発光層 (113、113a、113b、113c) に用いることができる発光物質としては、一重項励起エネルギーを可視光領域の発光に変える発光物質、または三重項励起エネルギーを可視光領域の発光に変える発光物質を用いることができる。

40

【0150】

なお、他の発光物質としては、例えば、以下のようなものが挙げられる。

【0151】

一重項励起エネルギーを発光に変える発光物質としては、蛍光を発する物質 (蛍光材料) が挙げられ、例えば、ピレン誘導体、アントラセン誘導体、トリフェニレン誘導体、フルオレン誘導体、カルバゾール誘導体、ジベンゾチオフェン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾキノキサリン誘導体、キノキサリン誘導体、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、フェナントレン誘導体、ナフタレン誘導体などが挙げられる。特にピレン誘導体は発

50

光量子収率が高いので好ましい。ピレン誘導体の具体例としては、N，N'-ビス（3-メチルフェニル）-N，N'-ビス〔3-（9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル）フェニル〕ピレン-1，6-ジアミン（略称：1，6mMemFLPAPrn）、N，N'-ジフェニル-N，N'-ビス〔4-（9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル）フェニル〕ピレン-1，6-ジアミン（略称：1，6FLPAPrn）、N，N'-ビス（ジベンゾフラン-2-イル）-N，N'-ジフェニルピレン-1，6-ジアミン（略称：1，6FrAPrn）、N，N'-ビス（ジベンゾチオフェン-2-イル）-N，N'-ジフェニルピレン-1，6-ジアミン（略称：1，6ThAPrn）、N，N'-（ピレン-1，6-ジイル）ビス〔（N-フェニルベンゾ〔b〕ナフト〔1，2-d〕フラン）-6-アミン〕（略称：1，6BnfAPrn）、N，N'-（ピレン-1，6-ジイル）ビス〔（N-フェニルベンゾ〔b〕ナフト〔1，2-d〕フラン）-8-アミン〕（略称：1，6BnfAPrn-02）、N，N'-（ピレン-1，6-ジイル）ビス〔（6，N-ジフェニルベンゾ〔b〕ナフト〔1，2-d〕フラン）-8-アミン〕（略称：1，6BnfAPrn-03）などが挙げられる。

【0152】

その他にも、5，6-ビス〔4-（10-フェニル-9-アントリル）フェニル〕-2，2'-ビピリジン（略称：PAP2BPY）、5，6-ビス〔4'-（10-フェニル-9-アントリル）ビフェニル-4-イル〕-2，2'-ビピリジン（略称：PAPP2BPY）、N，N'-ビス〔4-（9H-カルバゾール-9-イル）フェニル〕-N，N'-ジフェニルスチルベン-4，4'-ジアミン（略称：YGAA2S）、4-（9H-カルバゾール-9-イル）-4'-（10-フェニル-9-アントリル）トリフェニルアミン（略称：YGAPA）、4-（9H-カルバゾール-9-イル）-4'-（9，10-ジフェニル-2-アントリル）トリフェニルアミン（略称：2YGAPPA）、N，9-ジフェニル-N-〔4-（10-フェニル-9-アントリル）フェニル〕-9H-カルバゾール-3-アミン（略称：PCAPA）、4-（10-フェニル-9-アントリル）-4'-（9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル）トリフェニルアミン（略称：PCBAPA）、4-〔4-（10-フェニル-9-アントリル）フェニル〕-4'-（9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル）トリフェニルアミン（略称：PCBAPBA）、ペリレン、2，5，8，11-テトラ-tert-ブチルペリレン（略称：TBP）、N，N''-（2-tert-ブチルアントラセン-9，10-ジイルジ-4，1-フェニレン）ビス〔N，N'，N'-トリフェニル-1，4-フェニレンジアミン〕（略称：DPABPA）、N，9-ジフェニル-N-〔4-（9，10-ジフェニル-2-アントリル）フェニル〕-9H-カルバゾール-3-アミン（略称：2PCAPPA）、N-〔4-（9，10-ジフェニル-2-アントリル）フェニル〕-N，N'，N'-トリフェニル-1，4-フェニレンジアミン（略称：2DPAPPA）等を用いることができる。

【0153】

また、三重項励起エネルギーを発光に変える発光物質としては、例えば、燐光を発する物質（燐光材料）や熱活性化遅延蛍光を示す熱活性化遅延蛍光（Thermally activated delayed fluorescence：TADF）材料が挙げられる。

【0154】

燐光材料としては、有機金属錯体、金属錯体（白金錯体）、希土類金属錯体等が挙げられる。これらは、物質ごとに異なる発光色（発光ピーク）を示すため、必要に応じて適宜選択して用いる。

【0155】

青色または緑色を呈し、発光スペクトルのピーク波長が450nm以上570nm以下である燐光材料としては、以下のような物質が挙げられる。

【0156】

例えば、トリス〔2-〔5-（2-メチルフェニル）-4-（2，6-ジメチルフェニル）-4H-1，2，4-トリアゾール-3-イル-κN2〕フェニル-κC〕イリジウム

(III) (略称: [Ir(mpp tz-dmp)₃])、トリス(5-メチル-3, 4-ジフェニル-4H-1, 2, 4-トリアゾラト)イリジウム(III) (略称: [Ir(Mp tz)₃])、トリス[4-(3-ビフェニル)-5-イソプロピル-3-フェニル-4H-1, 2, 4-トリアゾラト]イリジウム(III) (略称: [Ir(iPr p tz-3b)₃])、トリス[3-(5-ビフェニル)-5-イソプロピル-4-フェニル-4H-1, 2, 4-トリアゾラト]イリジウム(III) (略称: [Ir(iPr 5 b tz)₃])、のような4H-トリアゾール骨格を有する有機金属錯体、トリス[3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾラト]イリジウム(III) (略称: [Ir(Mp tz 1-mp)₃])、トリス(1-メチル-5-フェニル-3-プロピル-1H-1, 2, 4-トリアゾラト)イリジウム(III) (略称: [Ir(Pr p tz 1-Me)₃])のような1H-トリアゾール骨格を有する有機金属錯体、factris[1-(2, 6-ジイソプロピルフェニル)-2-フェニル-1H-イミダゾール]イリジウム(III) (略称: [Ir(iPr p mi)₃])、トリス[3-(2, 6-ジメチルフェニル)-7-メチルイミダゾ[1, 2-f]フェナントリジナト]イリジウム(III) (略称: [Ir(dmp imp t-Me)₃])のようなイミダゾール骨格を有する有機金属錯体、ビス[2-(4', 6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N, C2']イリジウム(III) テトラキス(1-ピラゾリル)ボラート(略称: FIr6)、ビス[2-(4', 6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N, C2']イリジウム(III) ピコリナート(略称: FIrpic)、ビス{2-[3', 5'-ビス(トリフルオロメチル)フェニル]ピリジナト-N, 2c}イリジウム(III) ピコリナート(略称: [Ir(CF₃ppy)₂(pic)])、ビス[2-(4', 6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N, 2c]イリジウム(III) アセチルアセトナート(略称: FIr(acac))のように電子吸引基を有するフェニルピリジン誘導体を配位子とする有機金属錯体等が挙げられる。

【0157】

緑色または黄色を呈し、発光スペクトルのピーク波長が495nm以上590nm以下である燐光材料としては、以下のような物質が挙げられる。

【0158】

例えば、トリス(4-メチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(mppm)₃])、トリス(4-tert-ブチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(tBuppm)₃])、(アセチルアセトナト)ビス(6-メチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(mppm)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(tBuppm)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス[6-(2-ノルボルニル)-4-フェニルピリミジナト]イリジウム(III) (略称: [Ir(nb ppm)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス[5-メチル-6-(2-メチルフェニル)-4-フェニルピリミジナト]イリジウム(III) (略称: [Ir(mpppm)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス{4, 6-ジメチル-2-[6-(2, 6-ジメチルフェニル)-4-ピリミジニル-κN3]フェニル-κC}イリジウム(III) (略称: [Ir(dppm-dmp)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(4, 6-ジフェニルピリミジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(dppm)₂(acac)]、のようなピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体、(アセチルアセトナト)ビス(3, 5-ジメチル-2-フェニルピラジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(mppr-Me)₂(acac)]、(アセチルアセトナト)ビス(5-イソプロピル-3-メチル-2-フェニルピラジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(mppr-iPr)₂(acac)]、のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体、トリス(2-フェニルピリジナト-N, C2')イリジウム(III) (略称: [Ir(ppy)₃])、ビス(2-フェニルピリジナト-N, C2')イリジウム(III) アセチルアセトナート(略称: [Ir(ppy)₂(acac)]、ビス(

10

20

30

40

50

ベンゾ [h] キノリナト) イリジウム (III) アセチルアセトナート (略称: $[\text{Ir}(\text{bzq})_2(\text{acac})]$)、トリス (ベンゾ [h] キノリナト) イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{bzq})_3]$)、トリス (2-フェニルキノリナト-N, C2) イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{pq})_3]$)、ビス (2-フェニルキノリナト-N, C2) イリジウム (III) アセチルアセトナート (略称: $[\text{Ir}(\text{pq})_2(\text{acac})]$) のようなピリジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体、ビス (2, 4-ジフェニル-1, 3-オキサゾラト-N, C2) イリジウム (III) アセチルアセトナート (略称: $[\text{Ir}(\text{dpo})_2(\text{acac})]$)、ビス {2- [4'- (パーフルオロフェニル) フェニル] ピリジナト-N, C2} イリジウム (III) アセチルアセトナート (略称: $[\text{Ir}(\text{p-PF-ph})_2(\text{acac})]$)、ビス (2-フェニルベンゾチアゾラト-N, C2) イリジウム (III) アセチルアセトナート (略称: $[\text{Ir}(\text{bt})_2(\text{acac})]$) などの有機金属錯体の他、トリス (アセチルアセトナト) (モノフェナントロリン) テルビウム (III) (略称: $[\text{Tb}(\text{acac})_3(\text{Phen})]$) のような希土類金属錯体が挙げられる。

【0159】

黄色または赤色を呈し、発光スペクトルのピーク波長が 570 nm 以上 750 nm 以下である燐光材料としては、以下のような物質が挙げられる。

【0160】

例えば、(ジイソブチリルメタナト) ビス [4, 6-ビス (3-メチルフェニル) ピリミジナト] イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{5mdppm})_2(\text{dibm})]$)、ビス [4, 6-ビス (3-メチルフェニル) ピリミジナト] (ジピバロイルメタナト) イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{5mdppm})_2(\text{dpm})]$)、ビス [4, 6-ジ (ナフタレン-1-イル) ピリミジナト] (ジピバロイルメタナト) イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{d1npm})_2(\text{dpm})]$) のようなピリミジン骨格を有する有機金属錯体、(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: $[\text{Ir}(\text{tppr})_2(\text{acac})]$)、ビス (2, 3, 5-トリフェニルピラジナト) (ジピバロイルメタナト) イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{tppr})_2(\text{dpm})]$)、ビス {4, 6-ジメチル-2- [3- (3, 5-ジメチルフェニル) -5-フェニル-2-ピラジニル-κN] フェニル-κC} (2, 6-ジメチル-3, 5-ヘプタンジオナト-κ²O, O') イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{dmdppr-P})_2(\text{dibm})]$)、ビス {4, 6-ジメチル-2- [5- (4-シアノ-2, 6-ジメチルフェニル) -3- (3, 5-ジメチルフェニル) -2-ピラジニル-κN] フェニル-κC} (2, 2, 6, 6-テトラメチル-3, 5-ヘプタンジオナト-κ²O, O') イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{dmdppr-dmCP})_2(\text{dpm})]$)、(アセチルアセトナト) ビス [2-メチル-3-フェニルキノキサリナト-N, C2] イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{mpq})_2(\text{acac})]$)、(アセチルアセトナト) ビス (2, 3-ジフェニルキノキサリナト-N, C2) イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})]$)、(アセチルアセトナト) ビス [2, 3-ビス (4-フルオロフェニル) キノキサリナト] イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})]$) のようなピラジン骨格を有する有機金属錯体や、トリス (1-フェニルイソキノリナト-N, C2) イリジウム (III) (略称: $[\text{Ir}(\text{piq})_3]$)、ビス (1-フェニルイソキノリナト-N, C2) イリジウム (III) アセチルアセトナート (略称: $[\text{Ir}(\text{piq})_2(\text{acac})]$) のようなピリジン骨格を有する有機金属錯体、2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18-オクタエチル-21H, 23H-ポルフィリン白金 (II) (略称: $[\text{PtOEP}]$) のような白金錯体、トリス (1, 3-ジフェニル-1, 3-プロパンジオナト) (モノフェナントロリン) ユーロピウム (III) (略称: $[\text{Eu}(\text{DBM})_3(\text{Phen})]$)、トリス [1- (2-テノイル) -3, 3, 3-トリフルオロアセトナト] (モノフェナントロリン) ユーロピウム (III) (略称: $[\text{Eu}(\text{TTA})_3(\text{Phen})]$) のような希土類金属錯体が挙げられる。

10

20

30

40

50

【0161】

発光層（113、113a、113b、113c）に用いる有機化合物（ホスト材料、アシスト材料）としては、発光物質（ゲスト材料）のエネルギーギャップより大きなエネルギーギャップを有する物質を、一種もしくは複数種選択して用いればよい。

【0162】

発光物質が蛍光材料である場合、ホスト材料としては一重項励起状態のエネルギー準位が大きく、三重項励起状態のエネルギー準位が小さい有機化合物を用いるのが好ましい。例えば、アントラセン誘導体やテトラセン誘導体を用いるのが好ましい。具体的には、9-フェニル-3-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール（略称：PCzPA）、3-[4-(1-ナフチル)-フェニル]-9-フェニル-9H-カルバゾール（略称：PCPN）、9-[4-(10-フェニル-9-アントラセニル)フェニル]-9H-カルバゾール（略称：CzPA）、7-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-7H-ジベンゾ[c, g]カルバゾール（略称：cgDBCzPA）、6-[3-(9, 10-ジフェニル-2-アントリル)フェニル]-ベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン（略称：2mBnfPPA）、9-フェニル-10-{4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)-ビフェニル-4'-イル}-アントラセン（略称：FLPPA）、5, 12-ジフェニルテトラセン、5, 12-ビス（ビフェニル-2-イル）テトラセンなどが挙げられる。

10

【0163】

発光物質が燐光材料である場合、ホスト材料としては、発光物質の三重項励起エネルギー（基底状態と三重項励起状態とのエネルギー差）よりも三重項励起エネルギーの大きい有機化合物を選択すれば良い。なお、この場合には、亜鉛やアルミニウム系金属錯体の他、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、キノキサリン誘導体、ジベンゾキノキサリン誘導体、ジベンゾチオフェン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、ピリミジン誘導体、トリアジン誘導体、ピリジン誘導体、ビピリジン誘導体、フェナントロリン誘導体等の他、芳香族アミンやカルバゾール誘導体等を用いることができる。

20

【0164】

ホスト材料として、より具体的には、例えば以下の正孔輸送性材料および電子輸送性材料を用いることができる。

【0165】

これら正孔輸送性の高いホスト材料としては、例えば、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：DTDPPA）、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：DPA B）、N, N'-ビス{4-[ビス(3-メチルフェニル)アミノ]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：DNTPD）、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：DPA3B）等の芳香族アミン化合物を挙げることができる。

30

【0166】

また、3-[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzDPA1）、3, 6-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzDPA2）、3, 6-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-(1-ナフチル)アミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzTPN2）、3-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzPCA1）、3, 6-ビス[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzPCA2）、3-[N-(1-ナフチル)-N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)アミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzPCN1）等のカルバゾール誘導体を挙げることができる。また、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

40

50

ン（略称：TCPB）、1，4-ビス〔4-（N-カルbazolil）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もできる。

【0167】

また、正孔輸送性の高いホスト材料としては、例えば、4，4'-ビス〔N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：NPBまたは α -NPD）やN，N'-ビス（3-メチルフェニル）-N，N'-ジフェニル-〔1，1'-ビフェニル〕-4，4'-ジアミン（略称：TPD）、4，4'，4''-トリス（カルbazolil-9-イル）トリフェニルアミン（略称：TCTA）、4，4'，4''-トリス〔N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン（略称：1'-TNATA）、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：m-MTDATA）、4，4'-ビス〔N-（スピロ-9，9'-ビフルオレン-2-イル）-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：BSPB）、4-フェニル-4'-（9-フェニルフルオレン-9-イル）トリフェニルアミン（略称：BPALP）、4-フェニル-3'-（9-フェニルフルオレン-9-イル）トリフェニルアミン（略称：mBPALP）、N-（9，9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル）-N-〔9，9-ジメチル-2-〔N'-フェニル-N'-（9，9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル）アミノ〕-9H-フルオレン-7-イル〕フェニルアミン（略称：DFLADFL）、N-（9，9-ジメチル-2-ジフェニルアミノ-9H-フルオレン-7-イル）ジフェニルアミン（略称：DPNF）、2-〔N-（4-ジフェニルアミノフェニル）-N-フェニルアミノ〕スピロ-9，9'-ビフルオレン（略称：DPASF）、4-フェニル-4'-（9-フェニル-9H-カルbazolil-3-イル）トリフェニルアミン（略称：PCBA1BP）、4，4'-ジフェニル-4''-（9-フェニル-9H-カルbazolil-3-イル）トリフェニルアミン（略称：PCBBi1BP）、4-（1-ナフチル）-4'-（9-フェニル-9H-カルbazolil-3-イル）トリフェニルアミン（略称：PCBANB）、4，4'-ジ（1-ナフチル）-4''-（9-フェニル-9H-カルbazolil-3-イル）トリフェニルアミン（略称：PCBNBB）、4-フェニルジフェニル-（9-フェニル-9H-カルbazolil-3-イル）アミン（略称：PCA1BP）、N，N'-ビス（9-フェニルカルbazolil-3-イル）-N，N'-ジフェニルベンゼン-1，3-ジアミン（略称：PCA2B）、N，N'，N''-トリフェニル-N，N'，N''-トリス（9-フェニルカルbazolil-3-イル）ベンゼン-1，3，5-トリアミン（略称：PCA3B）、N-（4-ビフェニル）-N-（9，9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル）-9-フェニル-9H-カルbazolil-3-アミン（略称：PCBiF）、N-（1，1'-ビフェニル-4-イル）-N-〔4-（9-フェニル-9H-カルbazolil-3-イル）フェニル〕-9，9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミン（略称：PCBBiF）、9，9-ジメチル-N-フェニル-N-〔4-（9-フェニル-9H-カルbazolil-3-イル）フェニル〕フルオレン-2-アミン（略称：PCBAF）、N-フェニル-N-〔4-（9-フェニル-9H-カルbazolil-3-イル）フェニル〕スピロ-9，9'-ビフルオレン-2-アミン（略称：PCBASF）、2-〔N-（9-フェニルカルbazolil-3-イル）-N-フェニルアミノ〕スピロ-9，9'-ビフルオレン（略称：PCASF）、2，7-ビス〔N-（4-ジフェニルアミノフェニル）-N-フェニルアミノ〕-スピロ-9，9'-ビフルオレン（略称：DPA2SF）、N-〔4-（9H-カルbazolil-9-イル）フェニル〕-N-（4-フェニル）フェニルアニリン（略称：YGA1BP）、N，N'-ビス〔4-（カルbazolil-9-イル）フェニル〕-N，N'-ジフェニル-9，9-ジメチルフルオレン-2，7-ジアミン（略称：YGA2F）などの芳香族アミン化合物等を用いることができる。また、3-〔4-（1-ナフチル）-フェニル〕-9-フェニル-9H-カルbazolil（略称：PCPN）、3-〔4-（9-フェナントリル）-フェニル〕-9-フェニル-9H-カルbazolil（略称：PCPPn）、3，3'-ビス（9-フェニル-9H-カルbazolil）（略称：PCCP）、1，3-ビス（N-カルbazolil）ベンゼン（略称：mCP）、3，6-ビス（3，5-ジフェニルフェ

ニル) - 9 - フェニルカルバゾール (略称: CzTP)、4 - {3 - [3 - (9 - フェニル - 9 H - フルオレン - 9 - イル) フェニル] フェニル} ジベンゾフラン (略称: mmDBFFLBi-III)、4, 4', 4'' - (ベンゼン - 1, 3, 5 - トリイル) トリ (ジベンゾフラン) (略称: DBF3P-III)、1, 3, 5 - トリ (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) - ベンゼン (略称: DBT3P-III)、2, 8 - ジフェニル - 4 - [4 - (9 - フェニル - 9 H - フルオレン - 9 - イル) フェニル] ジベンゾチオフェン (略称: DBTFLP-III)、4 - [4 - (9 - フェニル - 9 H - フルオレン - 9 - イル) フェニル] - 6 - フェニルジベンゾチオフェン (略称: DBTFLP-IV)、4 - [3 - (トリフェニレン - 2 - イル) フェニル] ジベンゾチオフェン (略称: mDBTPTp-III) 等のカルバゾール化合物、チオフェン化合物、フラン化合物、フルオレン化合物、トリフェニレン化合物、フェナントレン化合物等を用いることができる。

10

【0168】

電子輸送性の高いホスト材料としては、例えば、トリス (8 - キノリノラト) アルミニウム (III) (略称: Alq)、トリス (4 - メチル - 8 - キノリノラト) アルミニウム (III) (略称: Almq₃)、ビス (10 - ヒドロキシベンゾ [h] キノリノラト) ベリリウム (II) (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 (III) (略称: BAlq)、ビス (8 - キノリノラト) 亜鉛 (II) (略称: Znq) 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である。また、この他ビス [2 - (2 - ベンゾオキサゾリル) フェノラト] 亜鉛 (II) (略称: ZnPBO)、ビス [2 - (2 - ベンゾチアゾリル) フェノラト] 亜鉛 (II) (略称: ZnBTZ) 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 - 7)、9 - [4 - (5 - フェニル - 1, 3, 4 - オキサジアゾール - 2 - イル) フェニル] - 9 H - カルバゾール (略称: CO11) のようなオキサジアゾール誘導体や、3 - (4 - ビフェニリル) - 4 - フェニル - 5 - (4 - tert - ブチルフェニル) - 1, 2, 4 - トリアゾール (略称: TAZ) のようなトリアゾール誘導体や、2, 2', 2'' - (1, 3, 5 - ベンゼントリイル) トリス (1 - フェニル - 1 H - ベンゾイミダゾール) (略称: TPBI)、2 - [3 - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) フェニル] - 1 - フェニル - 1 H - ベンゾイミダゾール (略称: mDBTBIm-III) のようなイミダゾール骨格を有する化合物 (特にベンゾイミダゾール誘導体) や、4, 4' - ビス (5 - メチルベンゾオキサゾール - 2 - イル) スチルベン (略称: BzOs) などのオキサゾール骨格を有する化合物 (特にベンゾオキサゾール誘導体) や、バソフェナントロリン (略称: Bphen)、バソキュプロイン (略称: BCP)、2, 9 - ビス (ナフタレン - 2 - イル) - 4, 7 - ジフェニル - 1, 10 - フェナントロリン (略称: NBphen) などのフェナントロリン誘導体や、2 - [3 - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) フェニル] ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 2mDBTPDBq-III)、2 - [3' - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) ビフェニル - 3 - イル] ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 2mDBTBPDDBq-III)、2 - [3' - (9 H - カルバゾール - 9 - イル) ビフェニル - 3 - イル] ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 2mCzBPDBq)、2 - [4 - (3, 6 - ジフェニル - 9 H - カルバゾール - 9 - イル) フェニル] ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 2CzPDDBq-III)、7 - [3 - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) フェニル] ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 7mDBTPDBq-III)、及び 6 - [3 - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) フェニル] ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 6mDBTPDBq-III)、4, 6 - ビス [3 - (フェナントレン - 9 - イル) フェニル] ピリミジン (略称: 4, 6mPnP2Pm)、4, 6 - ビス [3 - (4 - ジベンゾチエニル) フェニル] ピリミジン (略称: 4, 6mDBTP2Pm-III)、4, 6 - ビス [3 - (9 H - カルバゾール - 9 - イル) フェニル] ピリミジン (略称: 4, 6mCzP2Pm)

20

30

40

50

などのジアジン骨格を有する複素環化合物や、2- {4- [3- (N-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル) -9H-カルバゾール-9-イル] フェニル} -4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン (略称: PCCzPTzn) などのトリアジン骨格を有する複素環化合物や、3, 5-ビス [3- (9H-カルバゾール-9-イル) フェニル] ピリジン (略称: 35DCzPPy)、1, 3, 5-トリ [3- (3-ピリジル) フェニル] ベンゼン (略称: TmPyPB) などのピリジン骨格を有する複素環化合物も用いることができる。また、ポリ (2, 5-ピリジンジイル) (略称: PPy)、ポリ [(9, 9-ジヘキシルフルオレン-2, 7-ジイル) -co- (ピリジン-3, 5-ジイル)] (略称: PF-PPy)、ポリ [(9, 9-ジオクチルフルオレン-2, 7-ジイル) -co- (2, 2'-ビピリジン-6, 6'-ジイル)] (略称: PF-BPy) のような高分子化合物を用いることもできる。

10

【0169】

また、ホスト材料として、アントラセン誘導体、フェナントレン誘導体、ピレン誘導体、クリセン誘導体、ジベンゾ [g, p] クリセン誘導体等の縮合多環芳香族化合物が挙げられ、具体的には、9, 10-ジフェニルアントラセン (略称: DPAnth)、N, N-ジフェニル-9- [4- (10-フェニル-9-アントリル) フェニル] -9H-カルバゾール-3-アミン (略称: CzAlPA)、4- (10-フェニル-9-アントリル) トリフェニルアミン (略称: DPhPA)、YGAPA、PCAPA、N, 9-ジフェニル-N- {4- [4- (10-フェニル-9-アントリル) フェニル] フェニル} -9H-カルバゾール-3-アミン (略称: PCAPBA)、2PCAPA、6, 12-ジメトキシ-5, 11-ジフェニルクリセン、DBC1、9- [4- (10-フェニル-9-アントラセニル) フェニル] -9H-カルバゾール (略称: CzPA)、3, 6-ジフェニル-9- [4- (10-フェニル-9-アントリル) フェニル] -9H-カルバゾール (略称: DPCzPA)、9, 10-ビス (3, 5-ジフェニルフェニル) アントラセン (略称: DPPA)、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)、9, 9'-ビアントリル (略称: BANT)、9, 9'- (スチルベン-3, 3'-ジイル) ジフェナントレン (略称: DPNS)、9, 9'- (スチルベン-4, 4'-ジイル) ジフェナントレン (略称: DPNS2)、1, 3, 5-トリ (1-ピレニル) ベンゼン (略称: TPB3) などを用いることができる。

20

30

【0170】

また、発光層 (113、113a、113b、113c) に有機化合物を複数用いる場合、励起錯体を形成する2種類の化合物 (第1の化合物および第2の化合物) と、有機金属錯体とを混合して用いてもよい。この場合、様々な有機化合物を適宜組み合わせる用いることができるが、効率よく励起錯体を形成するためには、正孔を受け取りやすい化合物 (正孔輸送性材料) と、電子を受け取りやすい化合物 (電子輸送性材料) とを組み合わせることが特に好ましい。なお、正孔輸送性材料および電子輸送性材料の具体例については、本実施の形態で示す材料を用いることができる。この構成により、高効率、低電圧、長寿命を同時に実現できる。

【0171】

TADF材料とは、三重項励起状態をわずかな熱エネルギーによって一重項励起状態にアップコンバート (逆項間交差) が可能で、一重項励起状態からの発光 (蛍光) を効率よく呈する材料のことである。また、熱活性化遅延蛍光が効率良く得られる条件としては、三重項励起準位と一重項励起準位のエネルギー差が0 eV以上0.2 eV以下、好ましくは0 eV以上0.1 eV以下であることが挙げられる。また、TADF材料における遅延蛍光とは、通常の蛍光と同様のスペクトルを持ちながら、寿命が著しく長い発光をいう。その寿命は、10⁻⁶秒以上、好ましくは10⁻³秒以上である。

40

【0172】

TADF材料としては、例えば、フラーレンやその誘導体、プロフラビン等のアクリジン誘導体、エオシン等が挙げられる。また、マグネシウム (Mg)、亜鉛 (Zn)、カドミ

50

ウム (Cd)、スズ (Sn)、白金 (Pt)、インジウム (In)、もしくはパラジウム (Pd) 等を含む金属含有ポルフィリンが挙げられる。金属含有ポルフィリンとしては、例えば、プロトポルフィリンフッ化スズ錯体 (略称: SnF_2 (Proto IX))、メソポルフィリンフッ化スズ錯体 (略称: SnF_2 (Meso IX))、ヘマトポルフィリンフッ化スズ錯体 (略称: SnF_2 (Hemato IX))、コプロポルフィリンテトラメチルエステルフッ化スズ錯体 (略称: SnF_2 (Copro III-4Me))、オクタエチルポルフィリンフッ化スズ錯体 (略称: SnF_2 (OEP))、エチオポルフィリンフッ化スズ錯体 (略称: SnF_2 (Etio I))、オクタエチルポルフィリン塩化白金錯体 (略称: PtCl_2OEP) 等が挙げられる。

【0173】

その他にも、2-(ビフェニル-4-イル)-4,6-ビス(12-フェニルインドロ[2,3-a]カルバゾール-11-イル)-1,3,5-トリアジン (略称: PICTRZ)、2-{4-[3-(N-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)-9H-カルバゾール-9-イル]フェニル}-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン (略称: PCCzPTzn)、2-[4-(10H-フェノキサジン-10-イル)フェニル]-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン (略称: PXZ-TRZ)、3-[4-(5-フェニル-5,10-ジヒドロフェナジン-10-イル)フェニル]-4,5-ジフェニル-1,2,4-トリアゾール (略称: PPZ-3TPT)、3-(9,9-ジメチル-9H-アクリジン-10-イル)-9H-キサンテン-9-オン (略称: ACRXTN)、ビス[4-(9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリジン)フェニル]スルホン (略称: DMAC-DPS)、10-フェニル-10H,10'-H-スピロ[アクリジン-9,9'-アントラセン]-10'-オン (略称: ACRSA)、等の π 電子過剰型複素芳香環及び π 電子不足型複素芳香環を有する複素環化合物を用いることができる。なお、 π 電子過剰型複素芳香環と π 電子不足型複素芳香環とが直接結合した物質は、 π 電子過剰型複素芳香環のドナー性と π 電子不足型複素芳香環のアクセプター性が共に強くなり、一重項励起状態と三重項励起状態のエネルギー差が小さくなるため、特に好ましい。

【0174】

なお、TADF材料を用いる場合、他の有機化合物と組み合わせて用いることもできる。

【0175】

図1(D)に示す発光素子においては、EL層103aの発光層113a上に電子輸送層114aが真空蒸着法により形成される。また、EL層103aおよび電荷発生層104が形成された後、EL層103bの発光層113b上に電子輸送層114bが真空蒸着法により形成される。

【0176】

<電子輸送層>

電子輸送層(114、114a、114b)は、電子注入層(115、115a、115b)によって、第2の電極102や電荷発生層(104)から注入された電子を発光層(113、113a、113b)に輸送する層である。なお、電子輸送層(114、114a、114b)は、電子輸送性材料を含む層である。電子輸送層(114、114a、114b)に用いる電子輸送性材料は、 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質が好ましい。なお、正孔よりも電子の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いることができる。

【0177】

電子輸送性材料としては、キノリン配位子、ベンゾキノリン配位子、オキサゾール配位子、あるいはチアゾール配位子を有する金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、フェナントロリン誘導体、ピリジン誘導体、ビピリジン誘導体などが挙げられる。その他、含窒素複素芳香族化合物のような π 電子不足型複素芳香族化合物を用いることもできる。

【0178】

具体的には、Alq₃、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム (略称:

A l m q₃)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト)ベリリウム(略称: B e B q₂)、B A l q、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾラト]亜鉛(II)(略称: Z n (B O X)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: Z n (B T Z)₂)などの金属錯体、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: P B D)、O X D-7、3-(4'-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4''-ビフェニル)-1,2,4-トリアゾール(略称: T A Z)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ビフェニリル)-1,2,4-トリアゾール(略称: p-E t 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)、4,4'-ビス(5-メチルベンゾオキサゾール-2-イル)スチルベン(略称: B z O s)などの複素芳香族化合物、2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 2 m D B T P D B q- I I)、2-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル-3-イル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 2 m D B T B P D B q- I I)、2-[4-(3,6-ジフェニル-9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 2 C z P D B q- I I I)、7-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 7 m D B T P D B q- I I)、6-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 6 m D B T P D B q- I I)等のキノキサリンないしはジベンゾキノキサリン誘導体を用いることができる。

10

20

【0179】

また、ポリ(2,5-ピリジンジイル)(略称: P P y)、ポリ[(9,9-ジヘキシルフルオレン-2,7-ジイル)-co-(ピリジン-3,5-ジイル)](略称: P F- P y)、ポリ[(9,9-ジオクチルフルオレン-2,7-ジイル)-co-(2,2'-ビピリジン-6,6'-ジイル)](略称: P F- B P y)のような高分子化合物を用いることもできる。

【0180】

また、電子輸送層(114、114a、114b)は、単層のものだけでなく、上記物質からなる層が2層以上積層した構造であってもよい。

【0181】

図1(D)に示す発光素子においては、E L層103aの電子輸送層114a上に電子注入層115aが真空蒸着法により形成される。その後、E L層103aおよび電荷発生層104が形成され、E L層103bの電子輸送層114bまで形成された後、上に電子注入層115bが真空蒸着法により形成される。

30

【0182】

<電子注入層>

電子注入層(115、115a、115b)は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入層(115、115a、115b)には、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)、リチウム酸化物(L i O_x)等のようなアルカリ金属、アルカリ土類金属、またはそれらの化合物を用いることができる。また、フッ化エルビウム(E r F₃)のような希土類金属化合物を用いることができる。また、電子注入層(115、115a、115b)にエレクトライドを用いてもよい。エレクトライドとしては、例えば、カルシウムとアルミニウムの混合酸化物に電子を高濃度添加した物質等が挙げられる。なお、上述した電子輸送層(114、114a、114b)を構成する物質を用いることもできる。

40

【0183】

また、電子注入層(115、115a、115b)に、有機化合物と電子供与体(ドナー)とを混合してなる複合材料を用いてもよい。このような複合材料は、電子供与体によって有機化合物に電子が発生するため、電子注入性および電子輸送性に優れている。この場合、有機化合物としては、発生した電子の輸送に優れた材料であることが好ましく、具体

50

的には、例えば上述した電子輸送層（１１４、１１４ａ、１１４ｂ）に用いる電子輸送性材料（金属錯体や複素芳香族化合物等）を用いることができる。電子供与体としては、有機化合物に対し電子供与性を示す物質であればよい。具体的には、アルカリ金属やアルカリ土類金属や希土類金属が好ましく、リチウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、エルビウム、イッテルビウム等が挙げられる。また、アルカリ金属酸化物やアルカリ土類金属酸化物が好ましく、リチウム酸化物、カルシウム酸化物、バリウム酸化物等が挙げられる。また、酸化マグネシウムのようなルイス塩基を用いることもできる。また、テトラチアフルバレン（略称：ＴＴＦ）等の有機化合物を用いることもできる。

【０１８４】

なお、例えば、発光層１１３ｂから得られる光を増幅させる場合には、第２の電極１０２と、発光層１１３ｂとの光学距離が、発光層１１３ｂが呈する光の波長に対して $\lambda/4$ 未満となるように形成するのが好ましい。この場合、電子輸送層１１４ｂまたは電子注入層１１５ｂの膜厚を変えることにより、調整することができる。

【０１８５】

<電荷発生層>

電荷発生層１０４は、第１の電極（陽極）１０１と第２の電極（陰極）１０２との間に電圧を印加したときに、ＥＬ層１０３ａに電子を注入し、ＥＬ層１０３ｂに正孔を注入する機能を有する。なお、電荷発生層１０４は、正孔輸送性材料に電子受容体（アクセプター）が添加された構成であっても、電子輸送性材料に電子供与体（ドナー）が添加された構成であってもよい。また、これらの両方の構成が積層されていても良い。なお、上述した材料を用いて電荷発生層１０４を形成することにより、ＥＬ層が積層された場合における駆動電圧の上昇を抑制することができる。

【０１８６】

電荷発生層１０４において、正孔輸送性材料に電子受容体が添加された構成とする場合、正孔輸送性材料としては、本実施の形態で示した材料を用いることができる。また、電子受容体としては、７，７，８，８－テトラシアノー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。また元素周期表における第４族乃至第８族に属する金属の酸化物を挙げることができる。具体的には、酸化バナジウム、酸化ニオブ、酸化タンタル、酸化クロム、酸化モリブデン、酸化タングステン、酸化マンガン、酸化レニウムなどが挙げられる。

【０１８７】

電荷発生層１０４において、電子輸送性材料に電子供与体が添加された構成とする場合、電子輸送性材料としては、本実施の形態で示した材料を用いることができる。また、電子供与体としては、アルカリ金属またはアルカリ土類金属または希土類金属または元素周期表における第２、第１３族に属する金属およびその酸化物、炭酸塩を用いることができる。具体的には、リチウム（Ｌｉ）、セシウム（Ｃｓ）、マグネシウム（Ｍｇ）、カルシウム（Ｃａ）、イッテルビウム（Ｙｂ）、インジウム（Ｉｎ）、酸化リチウム、炭酸セシウムなどを用いることが好ましい。また、テトラチアナフタセンのような有機化合物を電子供与体として用いてもよい。

【０１８８】

なお、図１（Ｅ）のＥＬ層１０３ｃは、上述したＥＬ層（１０３、１０３ａ、１０３ｂ）と同様の構成とすればよい。また、電荷発生層１０４ａ、１０４ｂについても、上述した電荷発生層１０４と同様の構成とすればよい。

【０１８９】

<基板>

本実施の形態で示した発光素子は、様々な基板上に形成することができる。なお、基板の種類は、特定のものに限定されることはない。基板の一例としては、半導体基板（例えば単結晶基板又はシリコン基板）、ＳＯＩ基板、ガラス基板、石英基板、プラスチック基板、金属基板、ステンレス・スチル基板、ステンレス・スチル・ホイルを有する基板、タングステン基板、タングステン・ホイルを有する基板、可撓性基板、貼り合わせフィルム、

10

20

30

40

50

繊維状の材料を含む紙、又は基材フィルムなどが挙げられる。

【0190】

なお、ガラス基板の一例としては、バリウムホウケイ酸ガラス、アルミノホウケイ酸ガラス、又はソーダライムガラスなどが挙げられる。また、可撓性基板、貼り合わせフィルム、基材フィルムなどの一例としては、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）、ポリエーテルサルフォン（PES）に代表されるプラスチック、アクリル等の合成樹脂、ポリプロピレン、ポリエステル、ポリフッ化ビニル、又はポリ塩化ビニル、ポリアミド、ポリイミド、アラミド、エポキシ、無機蒸着フィルム、又は紙類などが挙げられる。

【0191】

なお、本実施の形態で示す発光素子の作製には、蒸着法などの真空プロセスや、スピンコート法やインクジェット法などの溶液プロセスを用いることができる。蒸着法を用いる場合には、スパッタ法、イオンプレーティング法、イオンビーム蒸着法、分子線蒸着法、真空蒸着法などの物理蒸着法（PVD法）や、化学蒸着法（CVD法）等を用いることができる。特に発光素子のEL層に含まれる機能層（正孔注入層（111、111a、111b）、正孔輸送層（112、112a、112b）、発光層（113、113a、113b、113c）、電子輸送層（114、114a、114b）、電子注入層（115、115a、115b））、および電荷発生層（104、104a、104b）については、蒸着法（真空蒸着法等）、塗布法（ディップコート法、ダイコート法、バーコート法、スピンコート法、スプレーコート法等）、印刷法（インクジェット法、スクリーン（孔版印刷）法、オフセット（平版印刷）法、フレキソ（凸版印刷）法、グラビア法、マイクロコンタクト法等）などの方法により形成することができる。

【0192】

なお、本実施の形態で示す発光素子のEL層（103、103a、103b）を構成する各機能層（正孔注入層（111、111a、111b）、正孔輸送層（112、112a、112b）、発光層（113、113a、113b、113c）、電子輸送層（114、114a、114b）、電子注入層（115、115a、115b））や電荷発生層（104、104a、104b）は、上述した材料に限られることなく、それ以外の材料であっても各層の機能を満たせるものであれば組み合わせて用いることができる。一例としては、高分子化合物（オリゴマー、 dendromer、ポリマー等）、中分子化合物（低分子と高分子の中間領域の化合物：分子量400～4000）、無機化合物（量子ドット材料等）等を用いることができる。なお、量子ドット材料としては、コロイド状量子ドット材料、合金型量子ドット材料、コア・シェル型量子ドット材料、コア型量子ドット材料などを用いることができる。

【0193】

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

【0194】

（実施の形態3）

本実施の形態では、本発明の一態様である発光装置について説明する。なお、図2（A）に示す発光装置は、第1の基板201上のトランジスタ（FET）202と発光素子（203R、203G、203B、203W）が電気的に接続されてなるアクティブマトリクス型の発光装置であり、複数の発光素子（203R、203G、203B、203W）は、共通のEL層204を有し、また、各発光素子の発光色に応じて、各発光素子の電極間の光学距離が調整されたマイクロキャビティ構造を有する。また、EL層204から得られた発光が第2の基板205に形成されたカラーフィルタ（206R、206G、206B）を介して射出されるトップエミッション型の発光装置である。

【0195】

図2（A）に示す発光装置は、第1の電極207を反射電極として機能するように形成する。また、第2の電極208を半透過・半反射電極として機能するように形成する。なお

10

20

30

40

50

、第1の電極207および第2の電極208を形成する電極材料としては、他の実施形態の記載を参照し、適宜用いればよい。

【0196】

また、図2(A)において、例えば、発光素子203Rを赤色発光素子、発光素子203Gを緑色発光素子、発光素子203Bを青色発光素子、発光素子203Wを白色発光素子とする場合、図2(B)に示すように発光素子203Rは、第1の電極207と第2の電極208との間が光学距離200Rとなるように調整し、発光素子203Gは、第1の電極207と第2の電極208との間が光学距離200Gとなるように調整し、発光素子203Bは、第1の電極207と第2の電極208との間が光学距離200Bとなるように調整する。なお、図2(B)に示すように、発光素子203Rにおいて導電層210Rを第1の電極207に積層し、発光素子203Gにおいて導電層210Gを第1の電極207上に積層することにより、光学調整を行うことができる。

10

【0197】

第2の基板205には、カラーフィルタ(206R、206G、206B)が形成されている。なお、カラーフィルタは、可視光のうち特定の波長域を通過させ、特定の波長域を阻止するフィルタである。従って、図2(A)に示すように、発光素子203Rと重なる位置に赤の波長域のみを通過させるカラーフィルタ206Rを設けることにより、発光素子203Rから赤色発光を得ることができる。また、発光素子203Gと重なる位置に緑の波長域のみを通過させるカラーフィルタ206Gを設けることにより、発光素子203Gから緑色発光を得ることができる。また、発光素子203Bと重なる位置に青の波長域のみを通過させるカラーフィルタ206Bを設けることにより、発光素子203Bから青色発光を得ることができる。但し、発光素子203Wは、カラーフィルタを設けることなく白色発光を得ることができる。なお、1種のカラーフィルタの端部には、黒色層(ブラックマトリックス)209が設けられていてもよい。さらに、カラーフィルタ(206R、206G、206B)や黒色層209は、透明な材料を用いたオーバーコート層で覆われていても良い。

20

【0198】

図2(A)では、第2の基板205側に発光を取り出す構造(トップエミッション型)の発光装置を示したが、図2(C)に示すようにFET202が形成されている第1の基板201側に光を取り出す構造(ボトムエミッション型)の発光装置としても良い。なお、ボトムエミッション型の発光装置の場合には、第1の電極207を半透過・半反射電極として機能するように形成し、第2の電極208を反射電極として機能するように形成する。また、第1の基板201は、少なくとも透光性の基板を用いる。また、カラーフィルタ(206R'、206G'、206B')は、図2(C)に示すように発光素子(203R、203G、203B)よりも第1の基板201側に設ければよい。

30

【0199】

また、図2(A)において、発光素子が、赤色発光素子、緑色発光素子、青色発光素子、白色発光素子の場合について示したが、本発明の一態様である発光素子はその構成に限られることはなく、黄色の発光素子や橙色の発光素子を有する構成であっても良い。なお、これらの発光素子を作製するためにEL層(発光層、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、電荷発生層など)に用いる材料としては、他の実施形態の記載を参照し、適宜用いればよい。なお、その場合には、また、発光素子の発光色に応じてカラーフィルタを適宜選択する必要がある。

40

【0200】

以上のような構成とすることにより、複数の発光色を呈する発光素子を備えた発光装置を得ることができる。

【0201】

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

【0202】

50

(実施の形態 4)

本実施の形態では、本発明の一態様である発光装置について説明する。

【0203】

本発明の一態様である発光素子の素子構成を適用することで、アクティブマトリクス型の発光装置や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。なお、アクティブマトリクス型の発光装置は、発光素子とトランジスタ（FET）とを組み合わせた構成を有する。従って、パッシブマトリクス型の発光装置、アクティブマトリクス型の発光装置は、いずれも本発明の一態様に含まれる。なお、本実施の形態に示す発光装置には、他の実施形態で説明した発光素子を適用することが可能である。

【0204】

本実施の形態では、アクティブマトリクス型の発光装置について図3を用いて説明する。

【0205】

なお、図3（A）は発光装置を示す上面図であり、図3（B）は図3（A）を鎖線A-A'で切断した断面図である。アクティブマトリクス型の発光装置は、第1の基板301上に設けられた画素部302、駆動回路部（ソース線駆動回路）303と、駆動回路部（ゲート線駆動回路）（304a、304b）を有する。画素部302および駆動回路部（303、304a、304b）は、シール材305によって、第1の基板301と第2の基板306との間に封止される。

【0206】

また、第1の基板301上には、引き回し配線307が設けられる。引き回し配線307は、外部入力端子であるFPC308と接続される。なお、FPC308は、駆動回路部（303、304a、304b）に外部からの信号（例えば、ビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等）や電位を伝達する。また、FPC308にはプリント配線基板（PWB）が取り付けられていても良い。なお、これらFPCやのPWBが取り付けられた状態は、発光装置に含まれる。

【0207】

次に、図3（B）に断面構造を示す。

【0208】

画素部302は、FET（スイッチング用FET）311、FET（電流制御用FET）312、およびFET312と電氣的に接続された第1の電極313を有する複数の画素により形成される。なお、各画素が有するFETの数は、特に限定されることはなく、必要に応じて適宜設けることができる。

【0209】

FET309、310、311、312は、特に限定されることはなく、例えば、スタガ型や逆スタガ型などのトランジスタを適用することができる。また、トップゲート型やボトムゲート型などのトランジスタ構造であってもよい。

【0210】

なお、これらのFET309、310、311、312に用いることのできる半導体の結晶性については特に限定されず、非晶質半導体、結晶性を有する半導体（微結晶半導体、多結晶半導体、単結晶半導体、又は一部に結晶領域を有する半導体）のいずれを用いてもよい。なお、結晶性を有する半導体を用いることで、トランジスタ特性の劣化を抑制できるため好ましい。

【0211】

また、これらの半導体としては、例えば、第14族の元素、化合物半導体、酸化物半導体、有機半導体などを用いることができる。代表的には、シリコンを含む半導体、ガリウムヒ素を含む半導体、インジウムを含む酸化物半導体などを適用することができる。

【0212】

駆動回路部303は、FET309とFET310とを有する。なお、FET309とFET310は、単極性（N型またはP型のいずれか一方のみ）のトランジスタを含む回路で形成されても良いし、N型のトランジスタとP型のトランジスタを含むCMOS回路で

10

20

30

40

50

形成されても良い。また、外部に駆動回路を有する構成としても良い。

【0213】

第1の電極313の端部は、絶縁物314により覆われている。なお、絶縁物314には、ネガ型の感光性樹脂や、ポジ型の感光性樹脂（アクリル樹脂）などの有機化合物や、酸化シリコン、酸化窒化シリコン、窒化シリコン等の無機化合物を用いることができる。絶縁物314の上端部または下端部には、曲率を有する曲面を有するのが好ましい。これにより、絶縁物314の上層に形成される膜の被覆性を良好なものとすることができる。

【0214】

第1の電極313上には、EL層315及び第2の電極316が積層形成される。EL層315は、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、電荷発生層等を有する。

10

【0215】

なお、本実施の形態で示す発光素子317の構成は、他の実施の形態で説明した構成や材料を適用することができる。なお、ここでは図示しないが、第2の電極316は外部入力端子であるFPC308に電氣的に接続されている。

【0216】

また、図3（B）に示す断面図では発光素子317を1つのみ図示しているが、画素部302において、複数の発光素子がマトリクス状に配置されているものとする。画素部302には、3種類（R、G、B）の発光が得られる発光素子をそれぞれ選択的に形成し、フルカラー表示可能な発光装置を形成することができる。また、3種類（R、G、B）の発光が得られる発光素子の他に、例えば、ホワイト（W）、イエロー（Y）、マゼンタ（M）、シアン（C）等の発光が得られる発光素子を形成してもよい。例えば、3種類（R、G、B）の発光が得られる発光素子に上述の数種類の発光が得られる発光素子を追加することにより、色純度の向上、消費電力の低減等の効果が得ることができる。また、カラーフィルタと組み合わせることによってフルカラー表示可能な発光装置としてもよい。なお、カラーフィルタの種類としては、赤（R）、緑（G）、青（B）、シアン（C）、マゼンタ（M）、イエロー（Y）等を用いることができる。

20

【0217】

第1の基板301上のFET（309、310、311、312）や、発光素子317は、第2の基板306と第1の基板301とをシール材305により貼り合わせることにより、第1の基板301、第2の基板306、およびシール材305で囲まれた空間318に備えられた構造を有する。なお、空間318には、不活性気体（窒素やアルゴン等）や有機物（シール材305を含む）で充填されていてもよい。

30

【0218】

シール材305には、エポキシ系樹脂やガラスフリットを用いることができる。なお、シール材305には、できるだけ水分や酸素を透過しない材料を用いることが好ましい。また、第2の基板306は、第1の基板301に用いることができるものを同様に用いることができる。従って、他の実施形態で説明した様々な基板を適宜用いることができるものとする。基板としてガラス基板や石英基板の他、FRP（Fiber-Reinforced Plastics）、PVF（ポリビニルフロライド）、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。シール材としてガラスフリットを用いる場合には、接着性の観点から第1の基板301及び第2の基板306はガラス基板であることが好ましい。

40

【0219】

以上のようにして、アクティブマトリクス型の発光装置を得ることができる。

【0220】

また、アクティブマトリクス型の発光装置を可撓性基板に形成する場合、可撓性基板上にFETと発光素子とを直接形成しても良いが、剥離層を有する別の基板にFETと発光素子を形成した後、熱、力、レーザ照射などを与えることによりFETと発光素子を剥離層で剥離し、さらに可撓性基板に転載して作製しても良い。なお、剥離層としては、例えば

50

、タングステン膜と酸化シリコン膜との無機膜の積層や、ポリイミド等の有機樹脂膜等を用いることができる。また可撓性基板としては、トランジスタを形成することが可能な基板に加え、紙基板、セロファン基板、アラミドフィルム基板、ポリイミドフィルム基板、布基板（天然繊維（絹、綿、麻）、合成繊維（ナイロン、ポリウレタン、ポリエステル）若しくは再生繊維（アセテート、キュプラ、レーヨン、再生ポリエステル）などを含む）、皮革基板、又はゴム基板などが挙げられる。これらの基板を用いることにより、耐久性や耐熱性に優れ、軽量化および薄型化を図ることができる。

【0221】

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

【0222】

（実施の形態5）

本実施の形態では、本発明の一態様である発光装置、本発明の一態様である発光素子を有する表示装置を適用して完成させた様々な電子機器や自動車の一例について、説明する。

【0223】

図4（A）～図4（E）に示す電子機器は、筐体7000、表示部7001、スピーカ7003、LEDランプ7004、操作キー7005（電源スイッチ、又は操作スイッチを含む）、接続端子7006、センサ7007（力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、光、液、磁気、温度、化学物質、音声、時間、硬度、電場、電流、電圧、電力、放射線、流量、湿度、傾度、振動、におい、又は赤外線を測定する機能を含むもの）、マイクロフォン7008、等を有することができる。

【0224】

図4（A）はモバイルコンピュータであり、上述したものの他に、スイッチ7009、赤外線ポート7010、等を有することができる。

【0225】

図4（B）は記録媒体を備えた携帯型の画像再生装置（たとえば、DVD再生装置）であり、上述したものの他に、第2表示部7002、記録媒体読込部7011、等を有することができる。

【0226】

図4（C）はゴーグル型ディスプレイであり、上述したものの他に、第2表示部7002、支持部7012、イヤホン7013、等を有することができる。

【0227】

図4（D）はテレビ受像機能付きデジタルカメラであり、上述したものの他に、アンテナ7014、シャッターボタン7015、受像部7016、等を有することができる。

【0228】

図4（E）は携帯電話機（スマートフォンを含む）であり、筐体7000に、表示部7001、マイクロフォン7019、スピーカ7003、カメラ7020、外部接続部7021、操作ボタン7022、等を有することができる。

【0229】

図4（F）は、大型のテレビジョン装置（テレビ、又はテレビジョン受信機ともいう）であり、筐体7000、表示部7001、スピーカ7003、等を有することができる。また、ここでは、スタンド7018により筐体7000を支持した構成を示している。

【0230】

図4（A）～図4（F）に示す電子機器は、様々な機能を有することができる。例えば、様々な情報（静止画、動画、テキスト画像など）を表示部に表示する機能、タッチパネル機能、カレンダー、日付又は時刻などを表示する機能、様々なソフトウェア（プログラム）によって処理を制御する機能、無線通信機能、無線通信機能を用いて様々なコンピュータネットワークに接続する機能、無線通信機能を用いて様々なデータの送信又は受信を行う機能、記録媒体に記録されているプログラム又はデータを読み出して表示部に表示する機能、等を有することができる。さらに、複数の表示部を有する電子機器においては、一

10

20

30

40

50

つの表示部を主として画像情報を表示し、別の一つの表示部を主として文字情報を表示する機能、または、複数の表示部に視差を考慮した画像を表示することで立体的な画像を表示する機能、等を有することができる。さらに、受像部を有する電子機器においては、静止画を撮影する機能、動画を撮影する機能、撮影した画像を自動または手動で補正する機能、撮影した画像を記録媒体（外部又はカメラに内蔵）に保存する機能、撮影した画像を表示部に表示する機能、等を有することができる。なお、図4（A）乃至図4（F）に示す電子機器が有することのできる機能はこれらに限定されず、様々な機能を有することができる。

【0231】

図4（G）は、スマートウォッチであり、筐体7000、表示部7001、操作ボタン7022、7023、接続端子7024、バンド7025、留め金7026、等を有する。

10

【0232】

ベゼル部分を兼ねる筐体7000に搭載された表示部7001は、非矩形状の表示領域を有している。表示部7001は、時刻を表すアイコン7027、その他のアイコン7028等を表示することができる。また、表示部7001は、タッチセンサ（入力装置）を搭載したタッチパネル（入出力装置）であってもよい。

【0233】

なお、図4（G）に示すスマートウォッチは、様々な機能を有することができる。例えば、様々な情報（静止画、動画、テキスト画像など）を表示部に表示する機能、タッチパネル機能、カレンダー、日付又は時刻などを表示する機能、様々なソフトウェア（プログラム）によって処理を制御する機能、無線通信機能、無線通信機能を用いて様々なコンピュータネットワークに接続する機能、無線通信機能を用いて様々なデータの送信又は受信を行う機能、記録媒体に記録されているプログラム又はデータを読み出して表示部に表示する機能、等を有することができる。

20

【0234】

また、筐体7000の内部に、スピーカ、センサ（力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、光、液、磁気、温度、化学物質、音声、時間、硬度、電場、電流、電圧、電力、放射線、流量、湿度、傾度、振動、におい又は赤外線を測定する機能を含むもの）、マイクロフォン等を有することができる。

【0235】

なお、本発明の一態様である発光装置および本発明の一態様である発光素子を有する表示装置は、本実施の形態に示す電子機器の各表示部に用いることができ、色純度の良い表示が可能となる。

30

【0236】

また、発光装置を適用した電子機器として、図5（A）～（C）に示すような折りたたみ可能な携帯情報端末が挙げられる。図5（A）には、展開した状態の携帯情報端末9310を示す。また、図5（B）には、展開した状態又は折りたたんだ状態の一方から他方に変化する途中の状態の携帯情報端末9310を示す。さらに、図5（C）には、折りたたんだ状態の携帯情報端末9310を示す。携帯情報端末9310は、折りたたんだ状態では可搬性に優れ、展開した状態では、継ぎ目のない広い表示領域により表示の一覧性に優れる。

40

【0237】

表示部9311はヒンジ9313によって連結された3つの筐体9315に支持されている。なお、表示部9311は、タッチセンサ（入力装置）を搭載したタッチパネル（入出力装置）であってもよい。また、表示部9311は、ヒンジ9313を介して2つの筐体9315間を屈曲させることにより、携帯情報端末9310を展開した状態から折りたたんだ状態に可逆的に変形させることができる。本発明の一態様の発光装置を表示部9311に用いることができる。また、色純度の良い表示が可能となる。表示部9311における表示領域9312は折りたたんだ状態の携帯情報端末9310の側面に位置する表示領域である。表示領域9312には、情報アイコンや使用頻度の高いアプリやプログラムの

50

ショートカットなどを表示させることができ、情報の確認やアプリなどの起動をスムーズに行うことができる。

【0238】

また、発光装置を適用した自動車について、図6(A)(B)に示す。すなわち、発光装置を、自動車と一体にして設けることができる。具体的には、図6(A)に示す自動車の外側のライト5101(車体後部も含む)、タイヤのホイール5102、ドア5103の一部または全体などに適用することができる。また、図6(B)に示す自動車の内側の表示部5104、ハンドル5105、シフトレバー5106、座席シート5107、インナーリアビューミラー5108等に適用することができる。その他、ガラス窓の一部に適用してもよい。

10

【0239】

以上のようにして、本発明の一態様である発光装置や表示装置を適用した電子機器や自動車を得ることができる。なお、その場合には、色純度の良い表示が可能となる。なお、適用できる電子機器や自動車は、本実施の形態に示したものに限らず、あらゆる分野において適用することが可能である。

【0240】

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

【0241】

(実施の形態6)

本実施の形態では、本発明の一態様である発光装置、またはその一部である発光素子を適用して作製される照明装置の構成について図7を用いて説明する。

20

【0242】

図7(A)、(B)、(C)、(D)には、照明装置の断面図の一例を示す。なお、図7(A)、(B)は基板側に光を取り出すボトムエミッション型の照明装置であり、図7(C)、(D)は、封止基板側に光を取り出すトップエミッション型の照明装置である。

【0243】

図7(A)に示す照明装置4000は、基板4001上に発光素子4002を有する。また、基板4001の外側に凹凸を有する基板4003を有する。発光素子4002は、第1の電極4004と、EL層4005と、第2の電極4006を有する。

30

【0244】

第1の電極4004は、電極4007と電氣的に接続され、第2の電極4006は電極4008と電氣的に接続される。また、第1の電極4004と電氣的に接続される補助配線4009を設けてもよい。なお、補助配線4009上には、絶縁層4010が形成されている。

【0245】

また、基板4001と封止基板4011は、シール材4012で接着されている。また、封止基板4011と発光素子4002の間には、乾燥剤4013が設けられていることが好ましい。なお、基板4003は、図7(A)のような凹凸を有するため、発光素子4002で生じた光の取り出し効率を向上させることができる。

40

【0246】

また、基板4003に代えて、図7(B)の照明装置4100のように、基板4001の外側に拡散板4015を設けてもよい。

【0247】

図7(C)の照明装置4200は、基板4201上に発光素子4202を有する。発光素子4202は第1の電極4204と、EL層4205と、第2の電極4206とを有する。

【0248】

第1の電極4204は、電極4207と電氣的に接続され、第2の電極4206は電極4208と電氣的に接続される。また第2の電極4206と電氣的に接続される補助配線4209を設けてもよい。また、補助配線4209の下部に、絶縁層4210を設けてもよ

50

い。

【0249】

基板4201と凹凸のある封止基板4211は、シール材4212で接着されている。また、封止基板4211と発光素子4202の間にバリア膜4213および平坦化膜4214を設けてもよい。なお、封止基板4211は、図7(C)のような凹凸を有するため、発光素子4202で生じた光の取り出し効率を向上させることができる。

【0250】

また、封止基板4211に代えて、図7(D)の照明装置4300のように、発光素子4202の上に拡散板4215を設けてもよい。

【0251】

なお、本実施の形態で示すように、本発明の一態様である発光装置、またはその一部である発光素子を適用することで、所望の色度を有する照明装置を提供することができる。

【0252】

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

【0253】

(実施の形態7)

本実施の形態では、本発明の一態様である発光装置、またはその一部である発光素子を適用して作製される照明装置の応用例について、図8を用いて説明する。

【0254】

室内の照明装置としては、シーリングライト8001として応用できる。シーリングライト8001には、天井直付型や天井埋め込み型がある。なお、このような照明装置は、発光装置を筐体やカバーと組み合わせることにより構成される。その他にもコードペンダント型(天井からのコード吊り下げ式)への応用も可能である。

【0255】

また、足元灯8002は、床面に灯りを照射し、足元の安全性を高めることができる。例えば、寝室や階段や通路などに使用するのが有効である。その場合、部屋の広さや構造に応じて適宜サイズや形状を変えることができる。また、発光装置と支持台とを組み合わせで構成される据え置き型の照明装置とすることも可能である。

【0256】

また、シート状照明8003は、薄型のシート状の照明装置である。壁面に張り付けて使用するため、場所を取らず幅広い用途に用いることができる。なお、大面積化も容易である。なお、曲面を有する壁面や筐体に用いることもできる。

【0257】

また、光源からの光が所望の方向のみに制御された照明装置8004を用いることもできる。

【0258】

なお、上記以外にも室内に備えられた家具の一部に本発明の一態様である発光装置、またはその一部である発光素子を適用することにより、家具としての機能を備えた照明装置とすることができる。

【0259】

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

【0260】

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

【実施例1】

【0261】

≪合成例1≫

本実施例では、実施の形態1の構造式(100)で表される本発明の一態様である有機化

10

20

30

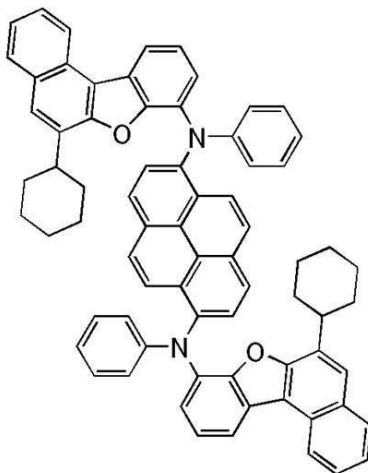
40

50

合物、N，N'－（ピレン－1，6－ジイル）ビス（N－フェニル－6－シクロヘキシルベンゾ[b]ナフト[1，2－d]フラン－8－アミン）（略称：1，6chBnfAPrn）の合成方法について説明する。なお、1，6chBnfAPrnの構造を以下に示す。

【0262】

【化31】



1,6chBnfAPrn
(100)

【0263】

<ステップ1：3－シクロヘキシル－2－メトキシナフタレンの合成>

8.9 g (37 mmol) の2－ブロモ－3－メトキシナフタレンと、0.53 g (1.1 mmol) の2－ジシクロヘキシルホスフィノ－2'，4'，6'－トリイソプロピルビフェニル（略称：XPhos）を1 L三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに94 mLのテトラヒドロフラン（略称：THF）を加え、この混合物を減圧脱気した後、70℃で攪拌した。この混合物に0.51 g (0.56 mmol) のトリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（0）（略称：Pd₂（dba）₃）を加え、100 mLのシクロヘキシルマグネシウムブロミド（1.0 mol/L テトラヒドロフラン溶液、0.10 mol）を滴下し、滴下後、この混合物を窒素気流下、70℃で6時間攪拌した。

【0264】

攪拌後、この混合物を0℃の塩酸（1 mol/L）に滴下し、得られた混合物の水層をトルエンで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して黄色油状物を得た。

【0265】

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン：トルエン 9：1）により精製したところ、目的物の白色固体を6.5 g、収率73%で得た。ステップ1の合成スキームを下記（a－1）に示す。

【0266】

10

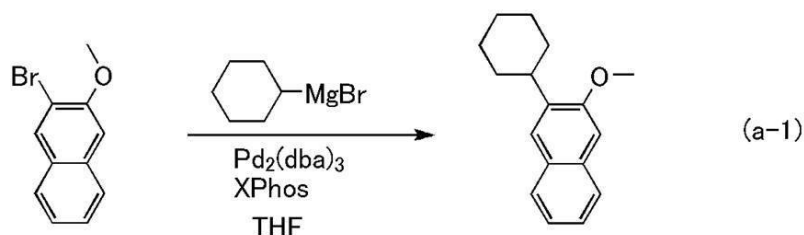
20

30

40

50

【化 3 2】



10

【0 2 6 7】

<ステップ 2：3-シクロヘキシル-2-ナフトールの合成>

6.5 g (27 mmol) の 3-シクロヘキシル-2-メトキシナフタレンを 500 mL 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに 140 mL のジクロロメタンを加え、この溶液を 0℃で撹拌した。この溶液に 55 mL の三臭化ホウ素 (1.0 mol/L ジクロロメタン溶液、55 mmol) を滴下し、滴下後溶液を室温に戻しながら 15 時間撹拌した。

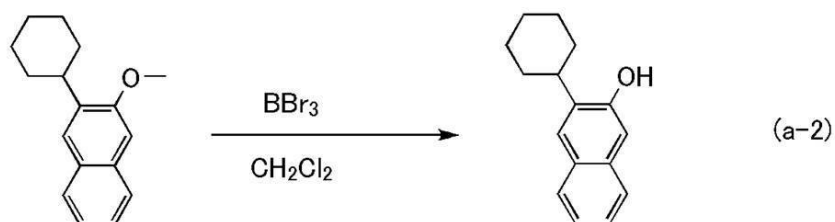
【0 2 6 8】

撹拌後、この混合物を 0℃の飽和炭酸水素ナトリウム水溶液に滴下し、得られた混合物の水層をジクロロメタンで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮したところ目的物の黄白色固体を 5.9 g、収率 96% で得た。ステップ 2 の合成スキームを下記 (a-2) に示す。

20

【0 2 6 9】

【化 3 3】



30

【0 2 7 0】

なお、上記ステップ 2 で得られた黄白色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析結果を下記に示す。この結果から、3-シクロヘキシル-2-ナフトールが得られたことがわかった。

【0 2 7 1】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : σ = 7.74 (d, J = 8.3 Hz, 1H)、7.63–7.61 (m, 2H)、7.39–7.26 (m, 2H)、7.07 (s, 1H)、4.93 (s, 1H)、2.99–2.91 (m, 1H)、1.99–1.78 (m, 5H)、1.54–1.25 (m, 5H)。

40

【0 2 7 2】

<ステップ 3：6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの合成>

5.9 g (26 mmol) の 3-シクロヘキシル-2-ナフトールと 9.2 g (52 mmol) の 2-ブロモフルオロベンゼンと 17 g (52 mmol) の炭酸セシウムを 500 mL 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに 130 mL の N-メチル-2-ピロリドン (略称：NMP) を加え、この溶液を減圧脱気した後、窒素気流下、180℃で 6.5 時間撹拌した。

50

【0273】

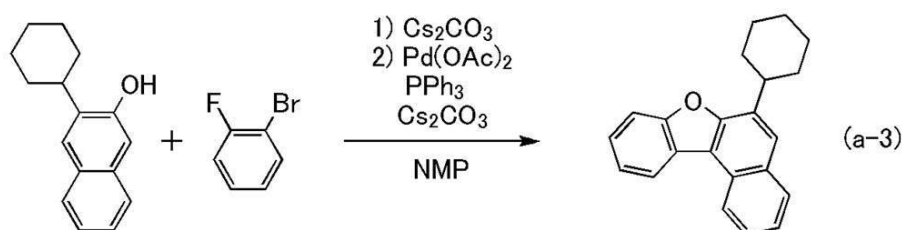
攪拌後、この混合物に10 g (31 mmol) の炭酸セシウムと、0.7 g (2.7 mmol) のトリフェニルホスフィンを加え、減圧下で攪拌することにより脱気した。この混合物に0.30 g (1.3 mmol) の酢酸パラジウム (II) を加え、窒素気流下、180℃で6時間攪拌した。

【0274】

攪拌後、この混合物に水を加え、水層を酢酸エチルで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して褐色油状物を得た。得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒：ヘキサン) により精製したところ、目的物の白色固体を7.0 g、収率89%で得た。ステップ3の合成スキームを下記 (a-3) に示す。

【0275】

【化34】



【0276】

なお、上記ステップ3で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析結果を下記に示す。この結果から、6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランが得られたことがわかった。

【0277】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : $\sigma = 8.60$ (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、 $8.41 - 8.38$ (m, 1H)、 7.99 (d, $J = 7.8$ Hz, 1H)、 $7.74 - 7.71$ (m, 2H)、 $7.68 - 7.63$ (m, 1H)、 $7.54 - 7.46$ (m, 3H)、 $3.38 - 3.28$ (m, 1H)、 $2.17 - 1.38$ (m, 10H)。

【0278】

<ステップ4：6-シクロヘキシル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの合成>

3.1 g (10 mmol) の6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランを300 mL三口フラスコに加え、フラスコ内を窒素置換した。ここに75 mLのテトラヒドロフランを加え、 -80°C で攪拌した。この溶液に7.2 mL (12 mmol) のn-ブチルリチウム (1.6 mol/L、n-ヘキサン溶液) を滴下し、温度を室温に戻して窒素気流下で2時間攪拌した。攪拌後、得られた混合物の温度を -80°C にした後、混合物に5.3 g (21 mmol) のヨウ素の20 mLテトラヒドロフラン溶液を加え、温度を徐々に室温に戻しながら15時間攪拌した。

【0279】

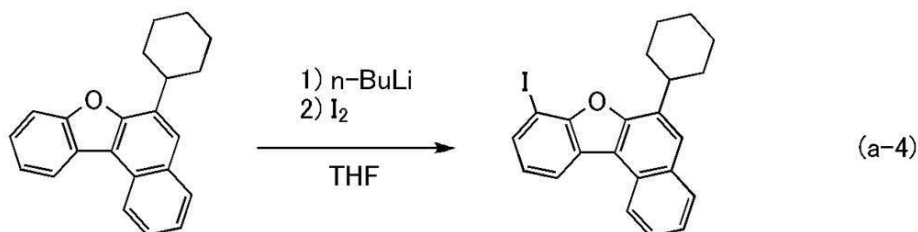
攪拌後、この混合物にチオ硫酸ナトリウム水溶液を加え、水層を酢酸エチルで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して褐色油状物を得た。

【0280】

得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒：ヘキサン) により精製したところ目的物の白色固体3.6 gを得た。ステップ4の合成スキームを下記 (a-4) に示す。

【0281】

【化35】



10

【0282】

なお、上記ステップ4で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析結果を下記に示す。この結果から、6-シクロヘキシル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランが得られたことがわかった。

【0283】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : $\sigma = 8.54$ (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、 $8.36 - 8.33$ (m, 1H)、 7.99 (d, $J = 7.8$ Hz, 1H)、 $7.86 - 7.83$ (m, 1H)、 7.76 (s, 1H)、 $7.69 - 7.61$ (m, 1H)、 $7.56 - 7.50$ (m, 1H)、 7.25 (t, $J = 7.8$ Hz, 1H)、 $3.37 - 3.28$ (m, 1H)、 $2.18 - 1.38$ (m, 10H)。

20

【0284】

^1H NMRから、得られた6-シクロヘキシル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランは、原料の6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランをNMR比で18%含むことがわかった。

【0285】

<ステップ5：N-フェニル-6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンの合成>

ステップ4で得られた1.7 g (3.9 mmol) の6-シクロヘキシル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン (6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランをNMR比で18%含む) と、0.44 g (4.7 mmol) のアニリンと1.1 g (12 mmol) のナトリウム *t*-ブトキシドを100 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に20 mLのトルエンを加え、得られた混合物を減圧脱気した。この混合物に0.30 mL (0.35 mmol) のトリ (*tert*-ブチル) ホスフィン (10 wt% ヘキサン溶液) と40 mg (70 μmol) のビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) を加えた後、窒素気流下、80°Cで7時間撹拌した。

30

【0286】

撹拌後、得られた混合物にトルエン300 mLを加えてから、フロリジール (和光純薬工業株式会社、カタログ番号：066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号：537-02305)、アルミナを通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、褐色固体を得た。

40

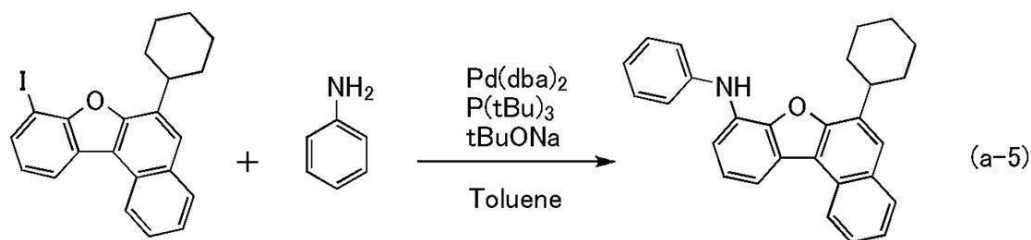
【0287】

この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒：ヘキサン：トルエン4：1) により精製したところ、目的物の白色固体を1.2 g、収率82%で得た。また、6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン0.20 gを回収した。ステップ5の合成スキームを下記 (a-5) に示す。

【0288】

50

【化 3 6】



10

【0289】

なお、上記ステップ5で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析結果を下記に示す。また、 ^1H NMRチャートを図9に示す。なお、図9(B)は、図9(A)における6.0 ppm~9.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。また、図9(C)は、図9(A)における1.0 ppm~3.5 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、N-フェニル-6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンが得られたことがわかった。

【0290】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.59$ (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、7.98-7.92 (m, 2H)、7.72 (s, 1H)、7.67-7.62 (m, 1H)、7.54-7.48 (m, 1H)、7.39-7.25 (m, 6H)、7.05-6.99 (m, 1H)、6.25 (s, 1H)、3.35-3.25 (m, 1H)、2.13-1.31 (m, 10H)。

20

【0291】

<ステップ6: 1, 6-chBnfAPrnの合成>

0.79 g (2.2 mmol) の1, 6-ジブプロモピレンと、1.7 g (4.4 mmol) のN-フェニル-6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンと、0.84 g (8.7 mmol) のナトリウム t-ブトキシドと、60 mg (0.15 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 6'-ジメトキシ-1, 1'-ビフェニル (略称: SPhos) を200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に22 mLのキシレンを加え、この混合物を減圧脱気した後、混合物に40 mg (70 μmol) のビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) を加え、この混合物を窒素気流下、140°Cで7時間攪拌した。

30

【0292】

攪拌後、トルエン500 mLを加えて加熱し、フロリジル (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 537-02305)、アルミナを通して熱時ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た黄色固体を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン: トルエン = 9: 1 から 7: 3 までグラジエントをかけた) により精製したところ、目的物の黄色固体を得た。得られた黄色固体をトルエンにて再結晶したところ、目的物の黄色固体を1.2 g、収率56%で得た。

40

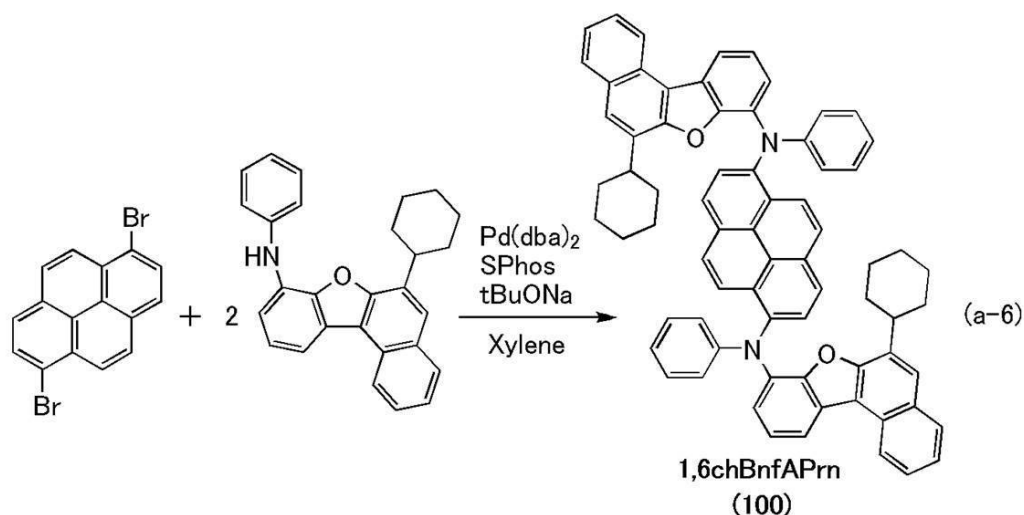
【0293】

得られた黄色固体1.2 gをトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力 2.0×10^{-2} Paの条件で、黄色固体を320°Cで6時間加熱して行った。昇華精製後、目的物の黄色固体を収量0.92 g、回収率76%で得た。ステップ6の合成スキームを下記(a-6)に示す。

【0294】

50

【化 37】



10

【0295】

なお、上記ステップ6で得られた黄色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析結果を下記に示す。また、 ^1H NMRチャートを図10に示す。なお、図10(B)は、図10(A)における6.5 ppm~9.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。また、図10(C)は、図10(A)における0.5 ppm~3.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、1,6chBnfAPrn (構造式(100)) が得られたことがわかった。

20

【0296】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.59$ (d, $J = 8.3$ Hz, 2H)、8.27 (d, $J = 8.8$ Hz, 2H)、8.13–8.10 (m, 2H)、8.06 (d, $J = 8.1$ Hz, 2H)、7.92–7.85 (m, 6H)、7.67–7.61 (m, 2H)、7.54–7.47 (m, 4H)、7.37 (t, $J = 7.8$ Hz, 2H)、7.24–7.16 (m, 6H)、7.03–6.96 (m, 6H)、2.51–2.41 (m, 2H)、1.48–0.74 (m, 20H)。

30

【0297】

次に、1,6chBnfAPrnのトルエン溶液および固体薄膜の紫外・可視吸収スペクトル (以下、単に「吸収スペクトル」という) 及び発光スペクトルを測定した。固体薄膜は石英基板上に真空蒸着法にて作製した。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計 (溶液: 日本分光株式会社製、V-550、薄膜: (株) 日立ハイテクノロジーズ製、U-4100) を用いた。なお溶液の吸収スペクトルは、石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いて算出し、薄膜の吸収スペクトルは、基板を含めた透過率と反射率から求めた吸光度 ($-\log_{10} [\%T / (100 - \%R)]$) より算出した。なお%Tは透過率、%Rは反射率を表す。また、発光スペクトルの測定には、蛍光光度計 ((株) 浜松ホトニクス製 FS920) を用いた。

40

【0298】

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図11(A)に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図11(B)に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

【0299】

図11(A)の結果より、1,6chBnfAPrnのトルエン溶液では、425 nm付近に吸収ピークが見られ、450 nm (励起波長 415 nm) に発光波長のピークが見ら

50

れた。また、図11(B)の結果より、1,6chBnfAPrnの固体薄膜では、425nm付近に吸収ピークが見られ、498nm、460nm付近(励起波長400nm)に発光波長のピークが見られた。

【0300】

また、1,6chBnfAPrnの示差走査熱量測定(DSC測定)を、パーキンエルマー社製、Pyris1DSCを用いて測定した。示差走査熱量測定は、昇温速度50℃/minにて、-10℃から370℃まで昇温した後、同温度で1分間保持してから降温速度100℃/minにて-10℃まで冷却し、続いて昇温速度10℃/minにて、-10℃から370℃まで昇温した後、同温度で1分間保持してから降温速度10℃/minにて-10℃まで冷却操作を行った。2回目昇温時のDSC測定結果からピークは観測されなかったため、1回目の昇温時のDSC測定結果から、1,6chBnfAPrnの融点は354℃であることが明らかとなった。

【0301】

また、1,6chBnfAPrnの熱重量測定-示差熱分析(TG-DTA: Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis)を行った。測定には高真空差動型示差熱天秤(ブルカー・エイエックスエス株式会社製、TG-DTA2410SA)を用いた。測定は、10Paにおいて、昇温速度10℃/min、窒素気流下(流速3.5mL/min)の条件で行った。熱重量測定-示差熱分析において、熱重量測定から求めた重量が測定開始時の-5%となる温度(分解温度)は338℃であることがわかり、350℃以下の比較的低い温度での昇華が確認された。

【実施例2】

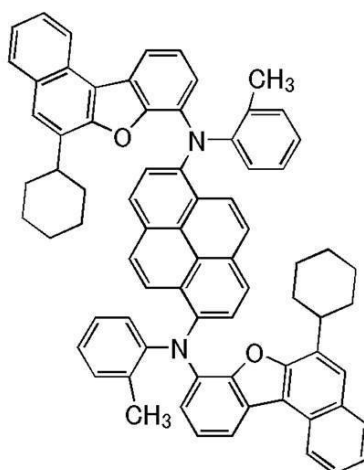
【0302】

《合成例2》

本実施例では、実施の形態1の構造式(101)で表される本発明の一態様である有機化合物、N,N'-(ピレン-1,6-ジイル)ビス[N-(2-メチルフェニル)-6-シクロヘキシルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミン](略称:1,6oMechBnfAPrn)の合成方法について説明する。なお、1,6oMechBnfAPrnの構造を以下に示す。

【0303】

【化38】



1,6oMechBnfAPrn
(101)

【0304】

本実施例で示す1,6oMechBnfAPrnの合成方法は、実施例1で示した1,6chBnfAPrnのステップ1からステップ4(6-シクロヘキシル-8-ヨードベン

ゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの合成) までの合成方法が共通である。共通のステップ1からステップ4までは実施例1を参照することとし、本実施例ではそれ以降のステップ7からについて示す。

【0305】

<ステップ7: N-(2-メチルフェニル)-6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンの合成>

1. 1 g (2.6 mmol) の6-シクロヘキシル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランと、0.33 g (3.1 mmol) のo-トルイジンと0.74 g (7.7 mmol) のナトリウム t-ブトキシドを100 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に13 mLのトルエンを加え、得られた混合物を減圧脱気した。この混合物に0.30 mL (0.35 mmol) のトリ (tert-ブチル) ホスフィン (10 wt% ヘキサン溶液) と40 mg (70 μmol) のビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) を加えた後、窒素気流下、80 °Cで4時間攪拌した。

【0306】

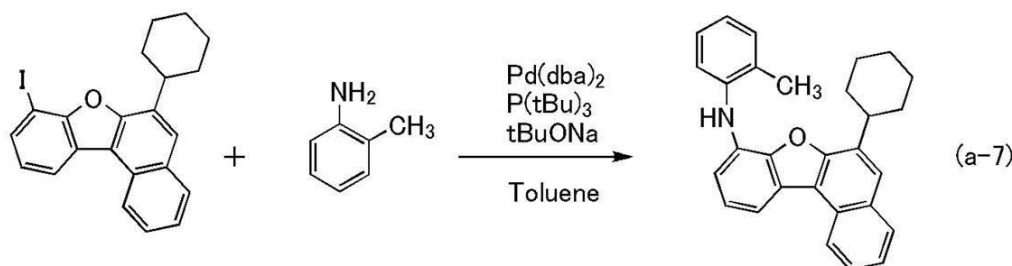
攪拌後、得られた混合物にトルエン300 mLを加えてから、フロリジール (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 537-02305)、アルミナを通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、褐色固体を得た。

【0307】

この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン: トルエン4: 1) により精製したところ、目的物の白色固体を0.64 g、収率61%で得た。ステップ7の合成スキームを下記 (a-7) に示す。

【0308】

【化39】



【0309】

なお、上記ステップ7で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析結果を下記に示す。また、 ^1H NMRチャートを図12に示す。なお、図12 (B) は、図12 (A) における6.0 ppm~9.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。また、図12 (C) は、図12 (A) における1.0 ppm~3.5 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、N-(2-メチルフェニル)-6-シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンが得られたことがわかった。

【0310】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): σ = 8.60 (d, J = 8.3 Hz, 1H)、7.99 (d, J = 7.8 Hz, 1H)、7.92-7.90 (m, 1H)、7.73 (s, 1H)、7.68-7.62 (m, 1H)、7.55-7.50 (m, 1H)、7.41 (d, J = 7.8 Hz, 1H)、7.36-7.28 (m, 2H)、7.23-7.13 (m, 2H)、7.05-7.00 (m, 1H)、6.01 (bs, 1H)、3.31-3.24 (m, 1H)、2.42 (s, 3H)、2.15-1.33 (m, 10

H) .

【0311】

<ステップ8：1, 6oMechBnfAPrnの合成>

1.5 g (4.1 mmol) の1, 6-ジブロモピレンと、3.3 g (8.2 mmol) のN-(2-メチルフェニル)-6-シクロヘキシルベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン-8-アミンと、1.6 g (16 mmol) のナトリウム t-ブトキシドと、60 mg (0.15 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 6'-ジメトキシ-1, 1'-ビフェニル (略称：SPhos) を200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に42 mLのキシレンを加え、この混合物を減圧脱気した後、混合物に40 mg (70 μmol) のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加え、この混合物を窒素気流下、140℃で6.5時間攪拌した。

10

【0312】

攪拌後、トルエン500 mLを加えて加熱し、フロリジール (和光純薬工業株式会社、カタログ番号：066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号：537-02305)、アルミナを通して熱時ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た黄色固体を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒：ヘキサン：トルエン=9：1から7：3までグラジエントをかけた) により精製したところ、目的物の黄色固体を得た。得られた黄色固体をトルエンにて再結晶したところ、目的物の黄色固体を1.0 g、収率24%で得た。

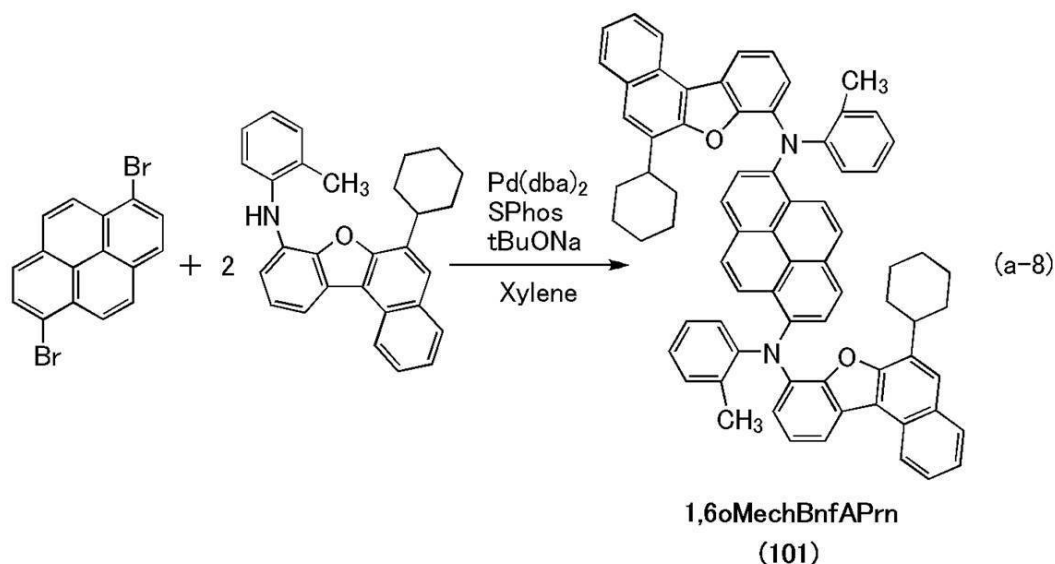
20

【0313】

得られた黄色固体1.0 gをトレインサブプリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力 2.0×10^{-2} Paの条件で、黄色固体を315℃で6時間加熱して行った。昇華精製後、目的物の黄色固体を収量0.92 g、回収率92%で得た。ステップ8の合成スキームを下記(a-8)に示す。

【0314】

【化40】



30

40

【0315】

なお、上記ステップ8で得られた黄色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析結果を下記に示す。また、 ^1H NMRチャートを図13に示す。なお、図13(B)は、図13(A)における6.5 ppm~9.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。また、図13(C)は、図13(A)における0.5 ppm~3.0 ppmの範

50

図を拡大して表したチャートである。この結果から、1, 6 o M e c h B n f A P r n (構造式 (101)) が得られたことがわかった。

【0316】

^1H NMR (CDCl_3 , 60°C , 300MHz): $\sigma = 8.58$ (d, $J = 8.3\text{Hz}$, 2H), $8.09 - 8.04$ (m, 4H), $7.95 - 7.89$ (m, 4H), 7.80 (d, $J = 9.3\text{Hz}$, 2H), $7.67 - 7.60$ (m, 4H), $7.51 - 7.45$ (m, 4H), $7.32 - 7.24$ (m, 4H), $7.16 - 7.07$ (m, 6H), $6.85 - 6.82$ (m, 2H), $2.46 - 2.40$ (m, 2H), 2.20 (s, 6H), $1.51 - 0.84$ (m, 20H)。

【0317】

次に、1, 6 o M e c h B n f A P r n のトルエン溶液および固体薄膜の、吸収スペクトル及び発光スペクトルを測定した。固体薄膜は石英基板上に真空蒸着法にて作製した。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計 (溶液: 日本分光株式会社製、V-550、薄膜: (株) 日立ハイテクノロジーズ製、U-4100) を用いた。なお溶液の吸収スペクトルは、石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いて算出し、薄膜の吸収スペクトルは、基板を含めた透過率と反射率から求めた吸光度 ($-\log_{10} [\%T / (100 - \%R)]$) より算出した。なお%Tは透過率、%Rは反射率を表す。また、発光スペクトルの測定には、蛍光光度計 ((株) 浜松ホトニクス製 FS920) を用いた。

【0318】

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図14 (A) に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図14 (B) に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

【0319】

図14 (A) の結果より、1, 6 o M e c h B n f A P r n のトルエン溶液では、 424nm 付近に吸収ピークが見られ、 448nm (励起波長 415nm) に発光波長のピークが見られた。また、図14 (B) の結果より、1, 6 o M e c h B n f A P r n の固体薄膜では、 428nm 付近に吸収ピークが見られ、 493nm 、 457nm 付近 (励起波長 400nm) に発光波長のピークが見られた。

【実施例3】

【0320】

《合成例3》

本実施例では、実施の形態1の構造式 (116) で表される本発明の一態様である有機化合物、N, N' - (ピレン-1, 6-ジイル) ビス (N-フェニル-6-イソプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン) (略称: 1, 6 i P r B n f A P r n) 及び、構造式 (118) で表されるN, N' - (ピレン-1, 6-ジイル) ビス (N-フェニル-6-ノルマルプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン) (略称: 1, 6 n P r B n f A P r n) の合成方法について説明する。なお、1, 6 i P r B n f A P r n および 1, 6 n P r B n f A P r n の構造を以下に示す。

【0321】

10

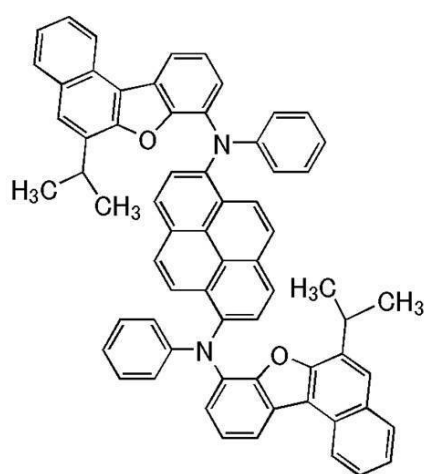
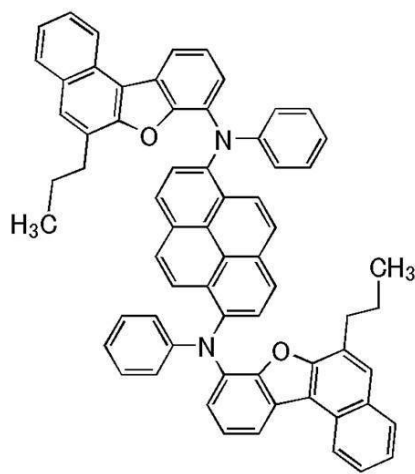
20

30

40

50

【化 4 1】

1,6iPrBnfAPrn
(116)1,6nPrBnfAPrn
(118)

【 0 3 2 2 】

<ステップ 1：3-イソプロピル-2-メトキシナフタレンの合成>

3.5 g (15 mmol) の 2-ブロモ-3-メトキシナフタレンと 0.21 g (0.44 mmol) の 2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',4',6'-トリイソプロピルビフェニル (略称：XPhos) を 1 L 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに 60 mL のテトラヒドロフラン (略称：THF) を加え、この混合物を減圧脱気した後、70℃で攪拌した。この混合物に 0.20 g (0.22 mmol) のトリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0) (略称：Pd₂(dba)₃) を加え、2.2 mL のシクロヘキシルマグネシウムブロミド (2.0 mol/L テトラヒドロフラン溶液、4.4 mmol) を滴下し、滴下後、この混合物を窒素気流下、70℃で 6 時間攪拌した。

【 0 3 2 3 】

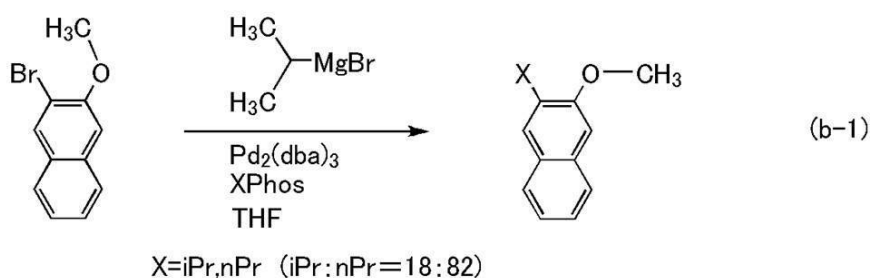
攪拌後、この混合物を 0℃の塩酸 (1 mol/L) に滴下し、得られた混合物の水層をトルエンで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して黄色油状物を得た。

【 0 3 2 4 】

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒：ヘキサン) により精製したところ、白色固体を 2.5 g、収率 75% で得た。ステップ 1 の合成スキームを下記 (b-1) に示す。

【 0 3 2 5 】

【化 4 2】



10

20

30

40

50

【0326】

なお、上記ステップ1で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析を行った。この結果から、3-イソプロピル-2-メトキシナフタレンと、3-ノルマルプロピル-2-メトキシナフタレンの混合物が得られたことがわかった。

【0327】

また、上記 ^1H NMRにおいて、3-イソプロピル-2-メトキシナフタレン：3-ノルマルプロピル-2-メトキシナフタレンが18：82の割合で生成したことがわかった。

【0328】

<ステップ2：3-イソプロピル-2-ナフトールと3-ノルマルプロピル-2-ナフトールの合成>

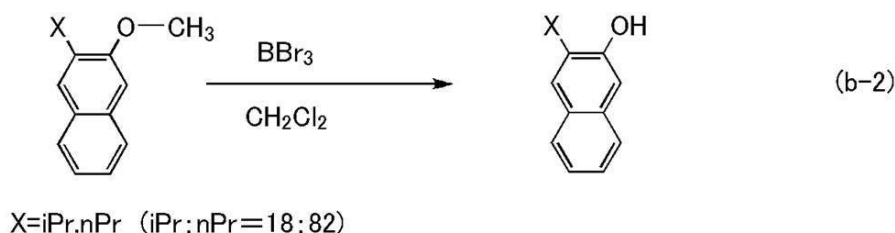
2.5 g (13 mmol) の3-イソプロピル-2-メトキシナフタレンと3-ノルマルプロピル-2-メトキシナフタレンの混合物を300 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに65 mLのジクロロメタンを加え、この溶液を0℃で撹拌した。この溶液に26 mLの三臭化ホウ素 (1.0 mol/L ジクロロメタン溶液、26 mmol) を滴下し、滴下後溶液を室温に戻しながら15時間撹拌した。

【0329】

撹拌後、この混合物を0℃の飽和炭酸水素ナトリウム水溶液に滴下し、得られた混合物の水層をジクロロメタンで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮したところ目的物の黄白色固体を2.3 g、収率98%で得た。ステップ2の合成スキームを下記 (b-2) に示す。

【0330】

【化43】



【0331】

なお、上記ステップ2で得られた黄白色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析を行った。この結果から、ナフトール化合物が得られたことがわかった。

【0332】

<ステップ3：6-イソプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランと6-ノルマルプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの合成>

2.3 g (12 mmol) の3-イソプロピル-2-ナフトールと3-ノルマルプロピル-2-ナフトールの混合物と4.3 g (25 mmol) の2-ブロモフルオロベンゼンと8.0 g (25 mmol) の炭酸セシウムを200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに62 mLのN-メチル-2-ピロリドン (略称：NMP) を加え、この溶液を減圧脱気した後、窒素気流下、180℃で7時間撹拌した。

【0333】

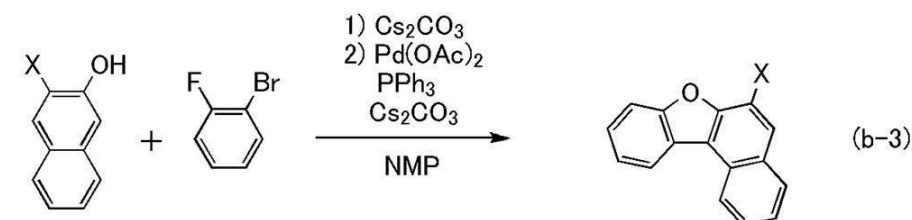
撹拌後、この混合物に7.2 g (22 mmol) の炭酸セシウムと、0.30 g (1.1 mmol) のトリフェニルホスフィンを加え、減圧下で撹拌することにより脱気した。この混合物に0.13 g (0.58 mmol) の酢酸パラジウム (II) を加え、窒素気流下、180℃で7時間撹拌した。

【0334】

攪拌後、この混合物に水を加え、水層を酢酸エチルで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して褐色油状物を得た。得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン）により精製したところ、目的物の白色固体を2.7 g、収率84%で得た。ステップ3の合成スキームを下記（b-3）に示す。

【0335】

【化44】



X=iPr,nPr (iPr:nPr=18:82)

【0336】

なお、上記ステップ3で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法（ ^1H NMR）による分析を行った。この結果から、ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン化合物が得られたことがわかった。

【0337】

<ステップ4：6-イソプロピル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランと6-ノルマルプロピル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの合成>
2.7 g (10 mmol) の6-イソプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランと6-ノルマルプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの混合物を300 mL三口フラスコに加え、フラスコ内を窒素置換した。ここに75 mLのテトラヒドロフランを加え、 -80°C で攪拌した。この溶液に7.2 mL (12 mmol) のn-ブチルリチウム (1.6 mol/L、n-ヘキサン溶液) を滴下し、温度を室温に戻して窒素気流下で2時間攪拌した。攪拌後、得られた混合物の温度を -80°C にした後、混合物に5.3 g (21 mmol) のヨウ素の20 mLテトラヒドロフラン溶液を加え、温度を徐々に室温に戻しながら15時間攪拌した。

【0338】

攪拌後、この混合物にチオ硫酸ナトリウム水溶液を加え、水層を酢酸エチルで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して褐色油状物を得た。

【0339】

得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン）により精製したところ目的物の白色固体3.2 gを得た。ステップ4の合成スキームを下記（b-4）に示す。

【0340】

10

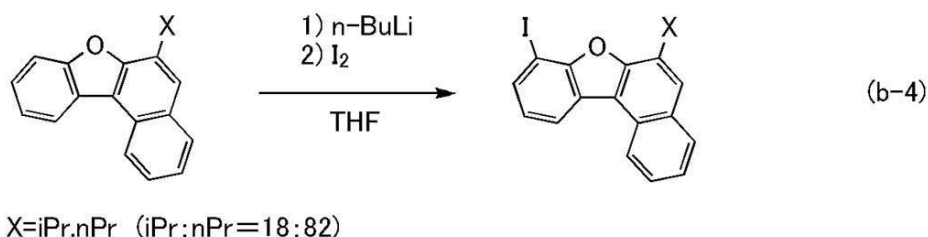
20

30

40

50

【化 4 5】



10

【0341】

なお、上記ステップ4で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析を行った。この結果から、8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン化合物が得られたことがわかった。

【0342】

^1H NMRから、目的物であるヨード体と原料の混合物が得られたことが明らかとなった。ヨード体と原料の混合比は、NMR比で87:13であった。

【0343】

<ステップ5：N-フェニル-6-イソプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンと、N-フェニル-6-ノルマルプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンの合成>

1.6 g (4.1 mmol) の6-イソプロピル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランと6-ノルマルプロピル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの混合物と、0.47 g (5.1 mmol) のアニリンと1.2 g (13 mmol) のナトリウム t-ブトキシドを100 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に21 mLのトルエンを加え、得られた混合物を減圧脱気した。この混合物に0.30 mL (0.35 mmol) のトリ (tert-ブチル) ホスフィン (10 wt% ヘキサン溶液) と40 mg (70 μmol) のビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) を加えた後、窒素気流下、80°Cで5.5時間攪拌した。

20

30

【0344】

攪拌後、得られた混合物にトルエン300 mLを加えてから、フロリジール (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 537-02305)、アルミナを通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、褐色油状物を得た。

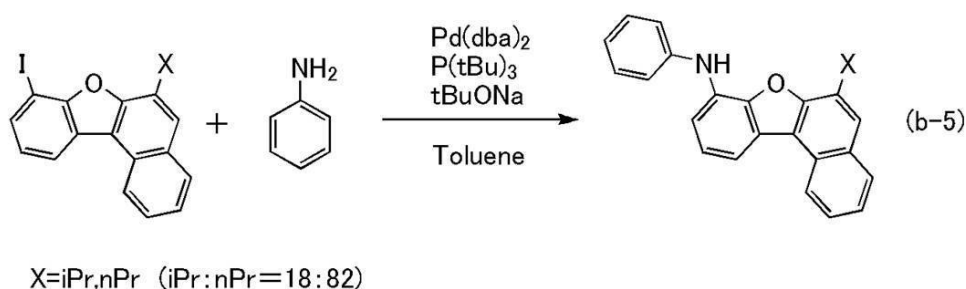
【0345】

この油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン: トルエン4: 1) により精製したところ、目的物の無色油状物を1.1 g、収率78%で得た。ステップ5の合成スキームを下記 (b-5) に示す。

【0346】

40

【化 4 6】



10

【0347】

上記ステップ5で得られた無色油状物の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析を行った。 ^1H NMRチャートを図15に示す。なお、図15(B)は、図15(A)における6.5 ppm~9.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。また、図15(C)は、図15(A)における0.5 ppm~4.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、N-フェニル-6-イソプロピルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミンと、N-フェニル-6-ノルマルプロピルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミンの混合物が得られたことがわかった。

【0348】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): σ =8.60-8.58 (m, 1H)、8.00-7.92 (m, 2H)、7.75-7.63 (m, 2H)、7.55-7.50 (m, 1H)、7.42-7.27 (m, 6H)、7.65-7.01 (m, 1H)、3.72-3.68 (m, 1H (iPr))、3.13 (t, J =7.6 Hz, 2H (nPr))、1.93 (sex t, J =7.4 Hz, 2H (nPr))、1.52 (d, J =6.8 Hz, 6H (iPr))、1.08 (t, J =7.6 Hz, 3H (nPr))。

20

【0349】

<ステップ6: 1, 6 iPr Bnf APr nと、1, 6 nPr Bnf APr nの合成>
0.36 g (1.0 mmol) の1, 6-ジプロモピレンと、0.71 g (2.0 mmol) のN-フェニル-6-イソプロピルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミンとN-フェニル-6-ノルマルプロピルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミンの混合物と、0.40 g (4.2 mmol) のナトリウム トーブトキシドと、60 mg (0.15 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 6'-ジメトキシ-1, 1'-ビフェニル (略称: SPhos) を100 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に10 mLのキシレンを加え、この混合物を減圧脱気した後、混合物に40 mg (70 μmol) のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加え、この混合物を窒素気流下、140℃で6.5時間攪拌した。

30

【0350】

攪拌後、トルエン500 mLを加えて加熱し、フロリジル (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 537-02305)、アルミナを通して熱時ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た黄色固体をトルエンにて再結晶したところ、目的物の黄色固体を0.43 g、収率48%で得た。

40

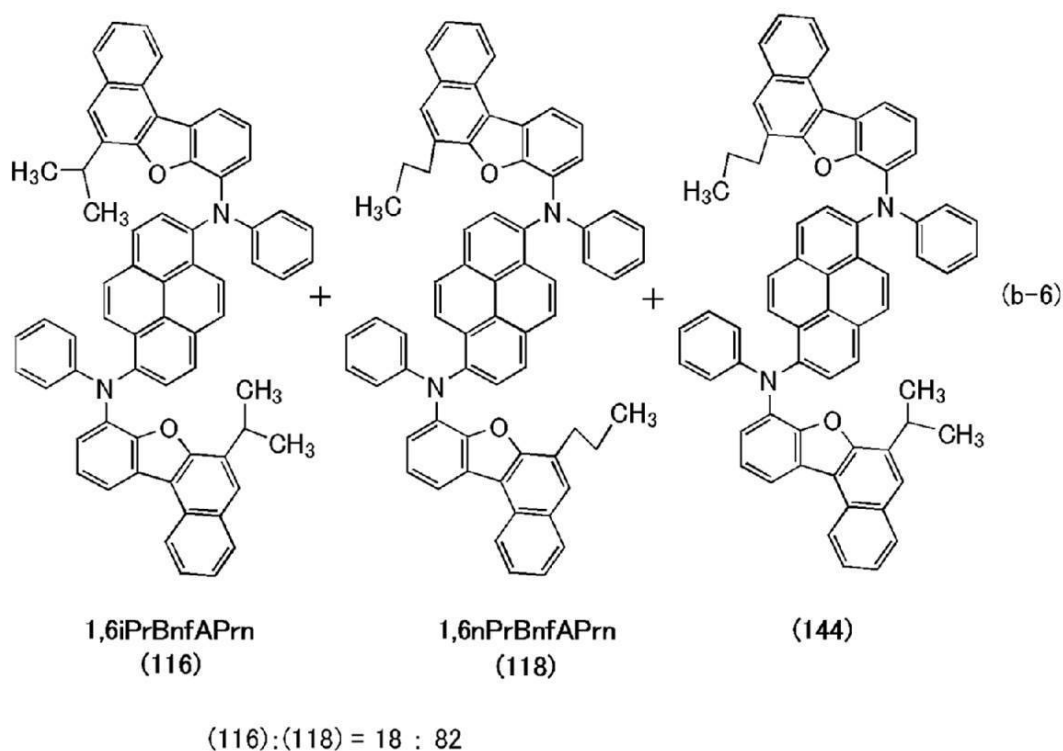
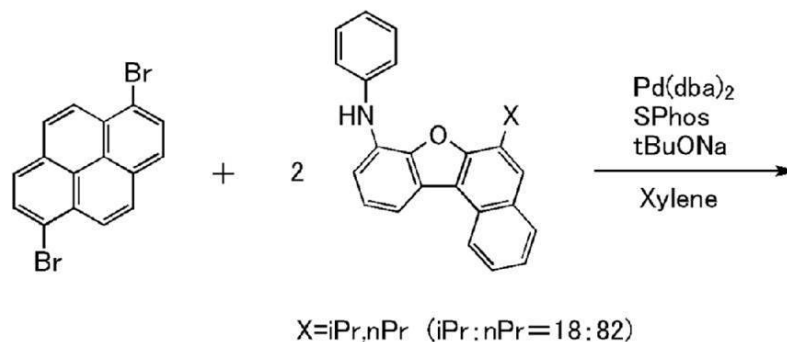
【0351】

得られた黄色固体1.2 gをトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力 2.0×10^{-2} Paの条件で、黄色固体を327℃で4時間加熱して行った。昇華精製後、目的物の黄色固体を収量0.32 g、回収率75%で得た。ステップ6の合成スキームを下記(b-6)に示す。

【0352】

50

【化 4 7】



【 0 3 5 3 】

上記ステップ 6 で得られた黄色固体の核磁気共鳴分光法 (^1H NMR) による分析を行った。 ^1H NMR チャートを図 16 に示す。なお、図 16 (B) は、図 16 (A) における 6.5 ppm ~ 9.0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。また、図 16 (C) は、図 16 (A) における 0 ppm ~ 4.0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、1,6-diisopropyl-2,2',6',6''-bis(phenylamino)phenanthrene (構造式 (116))、及び 1,6-dinonyl-2,2',6',6''-bis(phenylamino)phenanthrene (構造式 (118)) が得られたことがわかった。また、構造式 (144) に示す化合物も生成したと考えられる。

【実施例 4】

【 0 3 5 4 】

本実施例では、本発明の一態様である発光素子として、実施例 1 で説明した、1,6-dihydroxy-2,2',6',6''-bis(phenylamino)phenanthrene (構造式 (100)) を発光層に用いた発光素子 1、比較とする有機化合物、1,6-dihydroxy-2,2',6',6''-bis(phenylamino)phenanthrene-03 (構造式 (200)) を発光層に用いた比較発光素子 2、についてこれらの素子構造、作製方法およびその特性について説明する。なお、本実施例で用いる発光素子の素子構造を図 17 に示し、具体的な構成について表 1 に示す。また

、本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

【 0 3 5 5 】

【表 1】

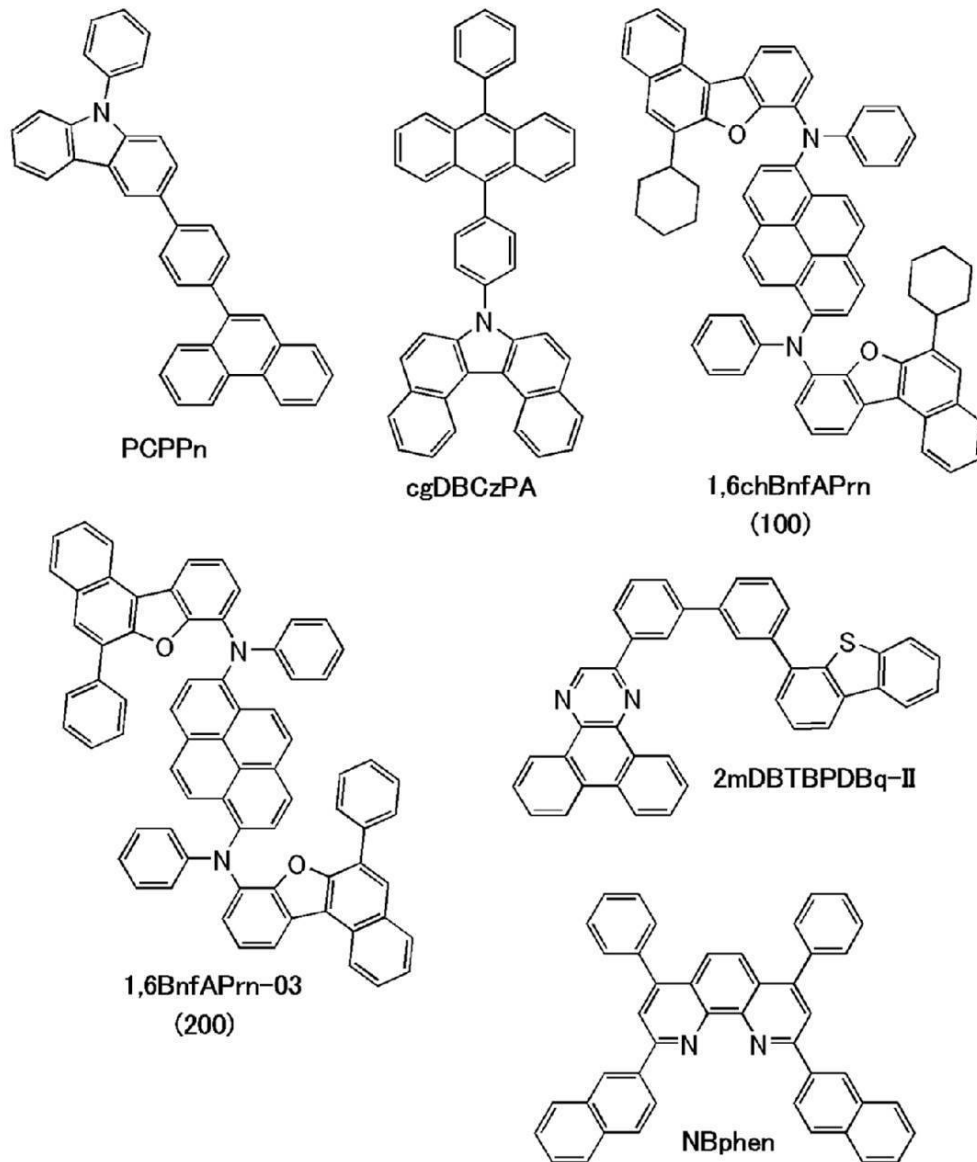
	第1 の電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発光層	電子 輸送層		電子 注入層	第2 の電極
発光素子 1	ITSO (70nm)	PCPPn:MoOx (4:2 10nm)	PCPPn (25nm)	*	2mDBTBPDBq-II (15nm)	NBphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
比較 発光素子 2	ITSO (70nm)	PCPPn:MoOx (4:2 10nm)	PCPPn (25nm)	**	2mDBTBPDBq-II (15nm)	NBphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)

* cgDBCzPA:1,6chBnfAPrn (1:0.03 25nm)

** cgDBCzPA:1,6BnfAPrn-03 (1:0.03 25nm)

【 0 3 5 6 】

【化 4 8】



【 0 3 5 7 】

＜発光素子の作製＞

本実施例で示す発光素子は、図 1 7 に示すように基板 9 0 0 上に形成された第 1 の電極 9 0 1 上に正孔注入層 9 1 1、正孔輸送層 9 1 2、発光層 9 1 3、電子輸送層 9 1 4、電子注入層 9 1 5 が順次積層され、電子注入層 9 1 5 上に第 2 の電極 9 0 3 が積層された構造を有する。

【 0 3 5 8 】

まず、基板 9 0 0 上に第 1 の電極 9 0 1 を形成した。電極面積は、 4 mm^2 ($2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$) とした。また、基板 9 0 0 には、ガラス基板を用いた。また、第 1 の電極 9 0 1 は、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物 (ITO) をスパッタリング法により、 70 nm の膜厚で成膜して形成した。

【 0 3 5 9 】

ここで、前処理として、基板の表面を水で洗浄し、 200°C で 1 時間焼成した後、UV オゾン処理を 370 秒行った。その後、 10^{-4} Pa 程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において、 170°C で 60 分間の真空焼成を行った後、基板を 30 分程度放冷した。

【0360】

次に、第1の電極901上に正孔注入層911を形成した。正孔注入層911は、真空蒸着装置内を 10^{-4} Paに減圧した後、3-[4-(9-フェナントリル)-フェニル]-9-フェニル-9H-カルバゾール（略称：PCPPn）と酸化モリブデンとを、PCPPn：酸化モリブデン=4：2（質量比）とし、膜厚が10 nmとなるようにそれぞれ共蒸着して形成した。

【0361】

次に、正孔注入層911上に正孔輸送層912を形成した。正孔輸送層912は、PCPPnを用い、膜厚が25 nmになるように蒸着して形成した。

【0362】

次に、正孔輸送層912上に発光層913を形成した。

【0363】

発光層913は、発光素子1の場合は、ホスト材料として、7-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-7H-ジベンゾ[c, g]カルバゾール（略称：cgDBCzPA）を用い、ゲスト材料としてN, N'-(ピレン-1, 6-ジイル)ビス(N-フェニル-6-シクロヘキシルベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン-8-アミン)（略称：1, 6chBnfAPrn）を用い、重量比がcgDBCzPA：1, 6chBnfAPrn=1：0.03となるように共蒸着した。なお、膜厚は、25 nmとした。

【0364】

発光層913は、比較発光素子2の場合は、ホスト材料としてcgDBCzPAを用い、ゲスト材料としてN, N'-(ピレン-1, 6-ジイル)ビス[(6, N-ジフェニルベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン)-8-アミン]（略称：1, 6BnfAPrn-03）を用い、重量比がcgDBCzPA：1, 6BnfAPrn-03=1：0.03となるように共蒸着した。なお、膜厚は、25 nmとした。

【0365】

次に、発光層913上に電子輸送層914を形成した。電子輸送層914は、2-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル-3-イル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン（略称：2mDBTBPD Bq-II）の膜厚が15 nm、2, 9-ビス(ナフタレン-2-イル)-4, 7-ジフェニル-1, 10-フェナントロリン（略称：NBphen）の膜厚が10 nmとなるように順次蒸着して形成した。

【0366】

次に、電子輸送層914上に電子注入層915を形成した。電子注入層915は、フッ化リチウム(LiF)を用い、膜厚が1 nmになるように蒸着して形成した。

【0367】

次に、電子注入層915上に第2の電極903を形成した。第2の電極903は、アルミニウムを蒸着法により、膜厚が200 nmとなるように形成した。なお、本実施例において、第2の電極903は、陰極として機能する。

【0368】

以上の工程により、基板900上に一对の電極間にEL層を挟んでなる発光素子を形成した。なお、上記工程で説明した正孔注入層911、正孔輸送層912、発光層913、電子輸送層914、電子注入層915は、本発明の一態様におけるEL層を構成する機能層である。また、上述した作製方法における蒸着工程では、全て抵抗加熱法による蒸着法を用いた。

【0369】

また、上記に示すように作製した発光素子は、別の基板（図示せず）により封止される。なお、別の基板（図示せず）を用いた封止の際は、窒素雰囲気グローブボックス内において、シール材を基板900上に形成された発光素子の周囲に塗布した後、乾燥剤を備えた別の基板（図示せず）を基板900上の所望の位置に重ね、365 nmの紫外光を6 J/cm²照射した。

【0370】

10

20

30

40

50

＜発光素子の動作特性＞

作製した発光素子 1 および比較発光素子 2 の動作特性について測定した。なお、測定は室温（25℃に保たれた雰囲気）で行った。また、発光素子 1 および比較発光素子 2 の動作特性の結果を図 18～図 21 に示す。

【0371】

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

【0372】

【表 2】

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度(x,y)	輝度 (cd/m ²)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)	外部量子効率 (%)
発光素子 1	3.3	0.49	12	(0.14,0.09)	1100	9.3	8.8	11
比較 発光素子 2	3.2	0.32	8.0	(0.14,0.11)	840	10	10	11

【0373】

上記結果から、本実施例で作製した発光素子は、いずれも良好な電流効率と高い外部量子効率を示しているが、特に発光素子 1 では、色度が良いという結果が得られた。

【0374】

また、発光素子 1 および比較発光素子 2 に 12.5 mA/cm² の電流密度で電流を流した際の発光スペクトルを、図 22 に示す。図 22 に示す通り、発光素子 1 および比較発光素子 2 の発光スペクトルは、いずれも 456 nm 付近にピークを有しており、それぞれの発光素子の発光層 913 に含まれる、1,6-Bn-f-A-P-r-n-03 または 1,6-ch-Bn-f-A-P-r-n の発光に由来していることが示唆される。一方、スペクトル形状を比較すると、発光素子 1 の方が、比較発光素子 2 に比べて長波長側のスペクトル成分が少なくなっていることがわかる。このことが、発光素子 1 の優れた青色の色度に繋がっている。

【0375】

次に、発光素子 1 および比較発光素子 2 に対する信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図 23 に示す。図 23 において、縦軸は初期輝度を 100% とした時の規格化輝度 (%) を示し、横軸は素子の駆動時間 (h) を示す。なお、信頼性試験は、2 mA における定電流駆動試験を行った。

【0376】

信頼性試験の結果より、本発明の一態様である発光素子 1 は、比較発光素子 2 よりも信頼性において優れた特性を示すことがわかった。特に、輝度が初期の 95% に減衰する時間 (LT95) を比較すると、比較発光素子 2 の LT95 が 33 時間であるのに対し、発光素子 1 の LT95 は 52 時間であり、約 1.6 倍もの長寿命化の効果が得られた。このことから、本発明の一態様である有機化合物、1,6-ch-Bn-f-A-P-r-n (構造式 (100)) を用いることは発光素子の長寿命化に関して有用であると言える。

【実施例 5】

【0377】

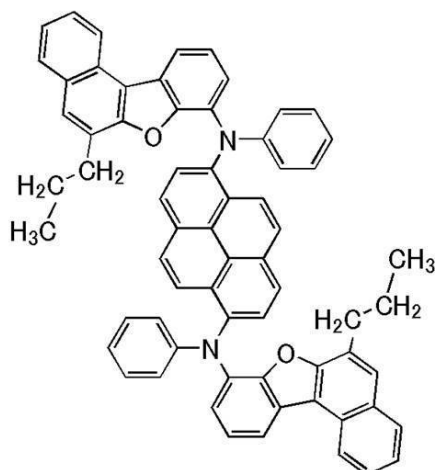
＜合成例 4＞

本実施例では、実施の形態 1 の構造式 (118) で表される本発明の一態様である有機化合物、N,N'-(ピレン-1,6-ジイル)ビス(N-フェニル-6-ノルマルプロピルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミン) (略称: 1,6-nPrBn-f-A-P-r-n) の合成方法について説明する。なお、1,6-nPrBn-f-A-P-r-n の構造を以下

に示す。

【0378】

【化49】



1,6nPrBnfAPrn
(118)

【0379】

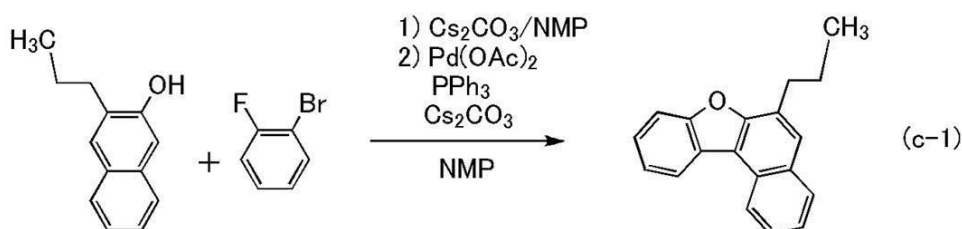
<ステップ1：6-ノルマルプロピルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フランの合成>
1.0 g (5.4 mmol) の3-ノルマルプロピル-2-ナフトールと、1.8 g (10 mmol) の2-ブロモフルオロベンゼンと、3.5 g (11 mmol) の炭酸セシウムを200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに30 mLのN-メチル-2-ピロリドン（略称：NMP）を加え、この溶液を減圧脱気した後、窒素気流下、170℃で6.5時間撹拌した。撹拌後、この混合物に3.5 g (11 mmol) の炭酸セシウムと、0.28 g (1.1 mmol) のトリフェニルホスフィンを加え、減圧下で撹拌することにより脱気した。この混合物に0.12 g (0.54 mmol) の酢酸パラジウム（II）を加え、窒素気流下、170℃で11時間撹拌した。

【0380】

撹拌後、この混合物に水を加え、水層を酢酸エチルで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して褐色油状物を得た。得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン）により精製したところ、目的物の白色固体を1.1 g、収率75%で得た。ステップ1の合成スキームを下記（c-1）に示す。

【0381】

【化50】



【0382】

また、上記ステップ1で得られた白色固体の核磁気共鳴分光法（ ^1H NMR）による測

定結果を以下に示す。

【0383】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.61$ (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、 $8.42 - 8.39$ (m, 1H)、 7.99 (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、 $7.73 - 7.63$ (m, 3H)、 $7.55 - 7.46$ (m, 3H)、 3.13 (t, $J = 6.8$ Hz, 2H)、 $1.99 - 1.87$ (m, $J = 7.8$ Hz, 2H)、 1.09 (t, $J = 7.3$ Hz, 3H)。

【0384】

<ステップ2: 6-ノルマルプロピル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの合成>

0.7 g (2.8 mmol) の6-ノルマルプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランを200 mL三口フラスコに加え、フラスコ内を窒素置換した。ここに15 mLのテトラヒドロフランを加え、 -80°C で撹拌した。この溶液に3.0 mL (4.7 mmol) の*n*-ブチリチウム (1.6 mol/L, *n*-ヘキサン溶液) を滴下し、温度を室温に戻して窒素気流下で2時間撹拌した。撹拌後、得られた混合物の温度を -80°C とし、混合物に1.5 g (5.9 mmol) のヨウ素の6 mLテトラヒドロフラン溶液を加え、温度を徐々に室温に戻しながら15時間撹拌した。

【0385】

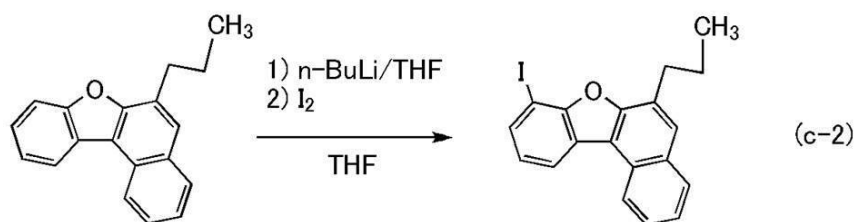
撹拌後、この混合物にチオ硫酸ナトリウム水溶液を加え、水層を酢酸エチルで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して褐色油状物を得た。

【0386】

得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン) により精製したところ目的物の白色固体を0.7 g、収率65%で得た。ステップ2の合成スキームを下記 (c-2) に示す。

【0387】

【化51】



【0388】

また、上記ステップ2で得られた白色固体の ^1H NMRによる測定結果を以下に示す。

【0389】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.55$ (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、 $8.36 - 8.33$ (m, 1H)、 7.99 (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、 $7.86 - 7.83$ (m, 1H)、 7.74 (s, 1H)、 $7.69 - 7.64$ (m, 1H)、 $7.56 - 7.51$ (m, 1H)、 7.25 (t, $J = 7.8$ Hz, 1H)、 3.17 (t, $J = 6.8$ Hz, 2H)、 $2.03 - 1.91$ (m, $J = 7.8$ Hz, 2H)、 1.10 (t, $J = 7.3$ Hz, 3H)。

【0390】

<ステップ3: N-フェニル-6-ノルマルプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンの合成>

0.70 g (1.8 mmol) の6-ノルマルプロピル-8-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランと、0.20 g (2.2 mmol) のアニリンと0.40 g (4.

2 mmol) のナトリウム *tert*-ブトキシドを 200 mL 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に 10 mL のトルエンを加え、得られた混合物を減圧脱気した。この混合物に 0.30 mL (0.35 mmol) のトリ (*tert*-ブチル) ホスフィン (10 wt % ヘキサン溶液) と 40 mg (70 μ mol) のビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) を加えた後、窒素気流下、110 °C で 3 時間撹拌した。

【0391】

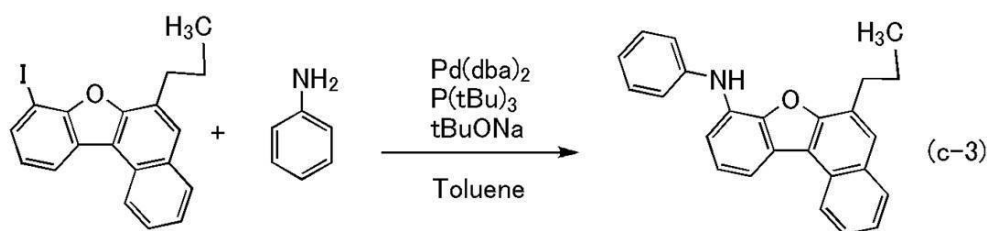
撹拌後、得られた混合物にトルエン 300 mL を加えてから、フロリジール (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 537-02305)、アルミナを通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、褐色固体を得た。

【0392】

この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン: トルエン 4: 1) により精製したところ、目的物の白色固体を 0.31 g、収率 50 % で得た。ステップ 3 の合成スキームを下記 (c-3) に示す。

【0393】

【化 5 2】



【0394】

また、上記ステップ 3 で得られた白色固体の ^1H NMR による測定結果を以下に示す。

【0395】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.60$ (d, $J = 8.3$ Hz, 1 H)、7.98–7.92 (m, 2 H)、7.71 (s, 1 H)、7.69–7.63 (m, 1 H)、7.55–7.50 (m, 1 H)、7.41–7.27 (m, 6 H)、7.05–7.01 (m, 1 H)、6.28 (br s, 1 H)、3.13 (t, $J = 6.8$ Hz, 2 H)、1.98–1.86 (m, $J = 7.8$ Hz, 2 H)、1.08 (t, $J = 7.3$ Hz, 3 H)。

【0396】

<ステップ 4: 1, 6-nPrBnfAPrn の合成>

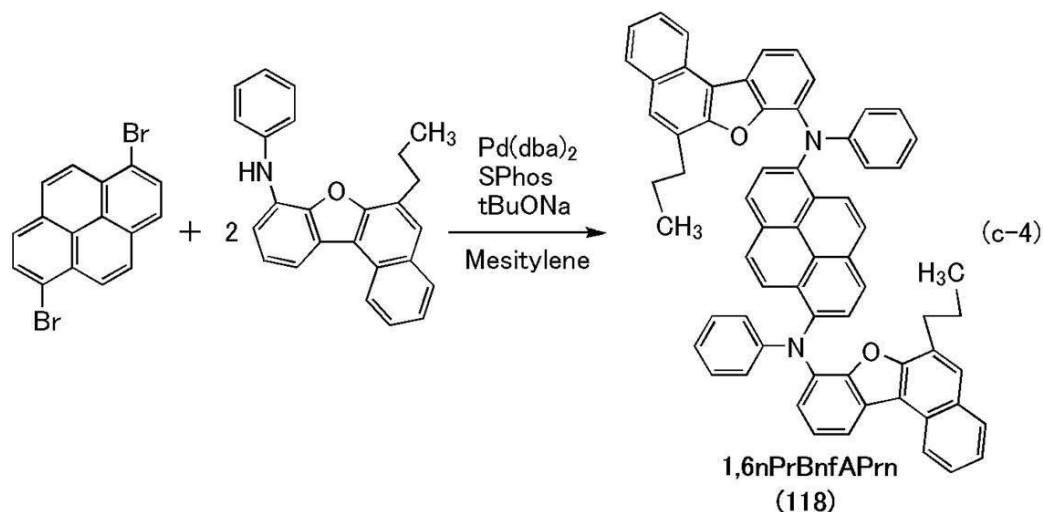
0.16 g (0.44 mmol) の 1, 6-ジブプロモピレンと、0.31 g (0.88 mmol) の *N*-フェニル-6-ノルマルプロピルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンと、0.17 g (1.8 mmol) のナトリウム *tert*-ブトキシドと、60 mg (0.15 mmol) の 2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 6'-ジメトキシ-1, 1'-ビフェニル (略称: SPhos) を 50 mL 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に 5 mL のメシチレンを加え、この混合物を減圧脱気した後、混合物に 40 mg (70 μ mol) のビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) を加え、この混合物を窒素気流下、170 °C で 6 時間撹拌した。

【0397】

撹拌後、トルエン 30 mL を加えて加熱し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: トルエン) により精製したところ、目的物の黄色固体を得た。得られた黄色固体をトルエンにて再結晶したところ、目的物の黄色固体を 0.23 g、収率 58 % で得た。ステップ 4 の合成スキームを下記 (c-4) に示す。

【0398】

【化 5 3】



【0399】

得られた黄色固体 0.23 g をトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力 3.3 Pa の条件で、黄色固体を 300 °C で 15 時間加熱して行った。昇華精製後、目的物の黄色固体を収量 0.19 g、回収率 83 % で得た。

【0400】

また、上記ステップ 4 で得られた黄色固体の ^1H NMR による測定結果を以下に示す。また、 ^1H NMR チャートを図 24 に示す。なお、図 24 (B) は、図 24 (A) における 6.5 ppm ~ 9.0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。また、図 24 (C) は、図 24 (A) における 0 ppm ~ 3.5 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、1,6nPrBnfAPrn (構造式 (118)) が得られたことがわかった。

【0401】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : σ = 8.57 (d, J = 8.8 Hz, 2H)、8.32 (d, J = 9.3 Hz, 2H)、8.12–8.04 (m, 4H)、7.92–7.85 (m, 6H)、7.64–7.59 (m, 2H)、7.50–7.45 (m, 4H)、7.34–7.30 (m, 4H)、7.23–7.17 (m, 4H)、7.01–6.95 (m, 6H)、2.42–2.37 (m, 4H)、1.16–1.08 (m, 4H)、0.44 (t, J = 7.3 Hz, 6H)。

【0402】

以下に、1,6nPrBnfAPrn のトルエン溶液及び固体薄膜の、吸収スペクトル及び発光スペクトルの測定結果を示す。測定方法は実施例 1 で示した方法と同様の方法で行った。

【0403】

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図 25 (A) に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図 25 (B) に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

【0404】

図 25 (A) の結果より、1,6nPrBnfAPrn のトルエン溶液では、423 nm 付近に吸収ピークが見られ、451 nm (励起波長 408 nm) に発光波長のピークが見られた。また、図 25 (B) の結果より、1,6nPrBnfAPrn の固体薄膜では、428 nm 付近に吸収ピークが見られ、461、489 nm 付近 (励起波長 410 nm) に発光波長のピークが見られた。

【実施例 6】

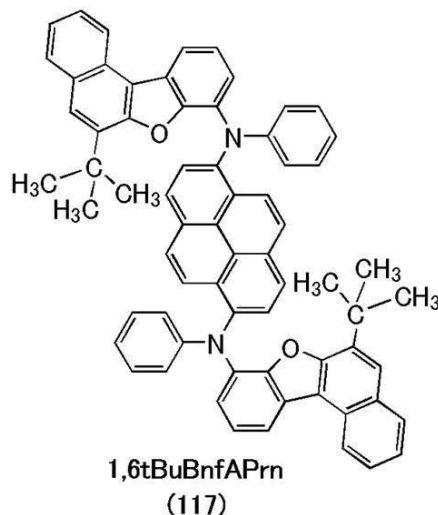
【0405】

≪合成例 5≫

本実施例では、実施の形態 1 の構造式 (117) で表される本発明の一態様である有機化合物、N, N' - (ピレン-1, 6-ジイル) ビス (N-フェニル-6-tert-ブチルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン) (略称: 1, 6tBuBnfAPrn) の合成方法について説明する。なお、1, 6tBuBnfAPrn の構造を以下に示す。

【0406】

【化 54】



【0407】

＜ステップ 1: 6-tert-ブチルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの合成＞
1.0 g (5.0 mmol) の 3-tert-ブチル-2-ナフトールと、1.8 g (10 mmol) の 2-ブロモフルオロベンゼンと、3.4 g (10 mmol) の炭酸セシウムを 200 mL 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに 30 mL の N-メチル-2-ピロリドン (略称: NMP) を加え、この混合物を減圧脱気した後、窒素気流下、170℃で 6.5 時間撹拌した。撹拌後、この混合物に 3.4 g (10 mmol) の炭酸セシウムと、0.14 g (0.53 mmol) のトリフェニルホスフィンを加え、減圧下で撹拌することにより脱気した。この混合物に 60 mg (0.27 mmol) の酢酸パラジウム (II) を加え、窒素気流下、170℃で 4.5 時間撹拌した。

【0408】

撹拌後、この混合物に水を加え、水層を酢酸エチルで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して褐色油状物を得た。得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン) により精製したところ、目的物の白色固体を 1.2 g、収率 90% で得た。ステップ 1 の合成スキームを下記 (d-1) に示す。

【0409】

10

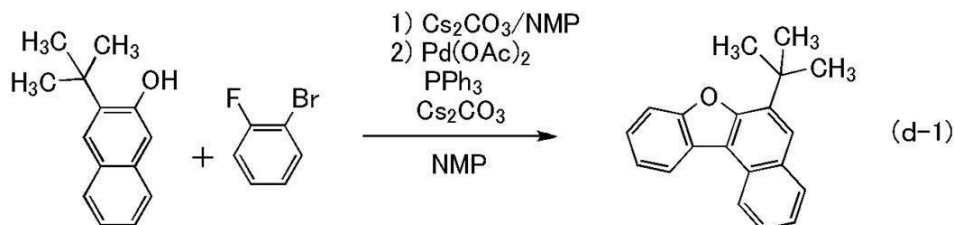
20

30

40

50

【化55】



【0410】

また、上記ステップ1で得られた白色固体の ^1H NMRによる測定結果を以下に示す。

【0411】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.62$ (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、 $8.43 - 8.40$ (m, 1H)、 $8.01 - 7.98$ (m, 1H)、 7.79 (s, 1H)、 $7.75 - 7.64$ (m, 2H)、 $7.55 - 7.46$ (m, 3H)、 1.66 (s, 9H)。

【0412】

<ステップ2: 6-tert-ブチル-8-ヨードベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フランの合成>

1.2 g (4.5 mmol) の6-tert-ブチルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フランを200 mL三口フラスコに加え、フラスコ内を窒素置換した。ここに35 mLのテトラヒドロフランを加え、 -80°C で撹拌した。この溶液に4.0 mL (6.2 mmol) のn-ブチルリチウム (1.6 mol/L, n-ヘキサン溶液) を滴下し、温度を室温に戻して窒素気流下で2時間撹拌した。撹拌後、得られた混合物の温度を -80°C とし、混合物に2.3 g (9.0 mmol) のヨウ素の15 mLテトラヒドロフラン溶液を加え、温度を徐々に室温に戻しながら15時間撹拌した。

【0413】

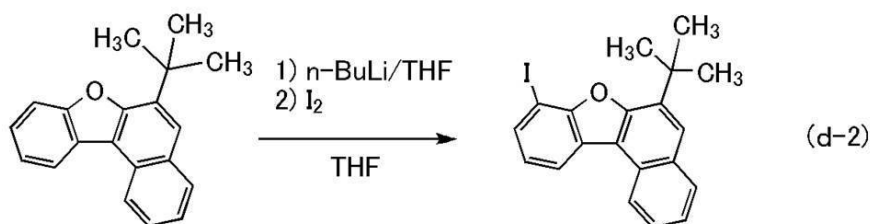
撹拌後、この混合物にチオ硫酸ナトリウム水溶液を加え、水層を酢酸エチルで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して褐色油状物を得た。

【0414】

得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン) により精製したところ目的物の白色固体を1.2 g、NMR純度45%、収率35%で得た。ステップ2の合成スキームを下記(d-2)に示す。

【0415】

【化56】



【0416】

また、上記ステップ2で得られた白色固体の ^1H NMRによる測定結果を以下に示す。

【0417】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.55$ (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、 $8.37 - 8.34$ (m, 1H)、 $8.01 - 7.98$ (m, 1H)、 $7.86 - 7$

・ 7.8 (m, 2H)、7.70–7.64 (m, 1H)、7.56–7.51 (m, 1H)、7.25–7.20 (m, 1H)、1.70 (s, 9H)。

【0418】

<ステップ3：N-フェニル-6-tert-ブチルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミンの合成>

1.2 g (2.9 mmol) の6-tert-ブチル-8-ヨードベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フランと、0.33 g (3.5 mmol) のアニリンと0.68 g (7.1 mmol) のナトリウム tert-ブトキシドを200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に15 mLのトルエンを加え、得られた混合物を減圧脱気した。この混合物に0.30 mL (0.35 mmol) のトリ(tert-ブチル)ホスフィン (10 wt%ヘキサン溶液) と40 mg (70 μmol) のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加えた後、窒素気流下、90℃で3時間撹拌した。

10

【0419】

撹拌後、得られた混合物にトルエン300 mLを加えてから、フロリジール(和光純薬工業株式会社、カタログ番号：066-05265)、セライト(和光純薬工業株式会社、カタログ番号：537-02305)、アルミナを通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、褐色固体を得た。

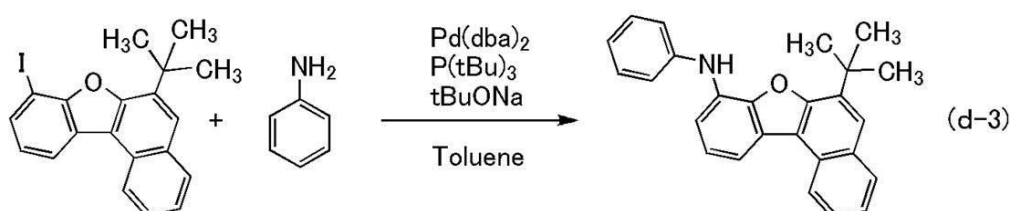
【0420】

この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒：ヘキサン：トルエン4：1)により精製したところ、目的物の白色固体を0.48 g、収率82%で得た。ステップ3の合成スキームを下記(d-3)に示す。

20

【0421】

【化57】



30

【0422】

また、上記ステップ3で得られた白色固体の¹H NMRによる測定結果を以下に示す。

【0423】

¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) : σ = 8.61 (d, J = 8.3 Hz, 1H)、8.01–7.95 (m, 2H)、7.78 (s, 1H)、7.70–7.64 (m, 1H)、7.56–7.50 (m, 1H)、7.41–7.28 (m, 6H)、7.06–7.00 (m, 1H)、6.19 (brs, 1H)、3.13 (s, 9H)。

40

【0424】

<ステップ4：1,6-tBuBnfAPrnの合成>

0.23 g (0.64 mmol) の1,6-ジブプロモピレンと、0.48 g (1.3 mmol) のN-フェニル-6-tert-ブチルベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミンと、0.25 g (2.6 mmol) のナトリウム tert-ブトキシドと、60 mg (0.15 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',6'-ジメトキシ-1,1'-ビフェニル(略称：SPhos)を200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に10 mLのメシチレンを加え、この混合物を減圧脱気した後、混合物に40 mg (70 μmol) のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加え、この混合物を窒素気流下、170℃で7時間撹拌した。

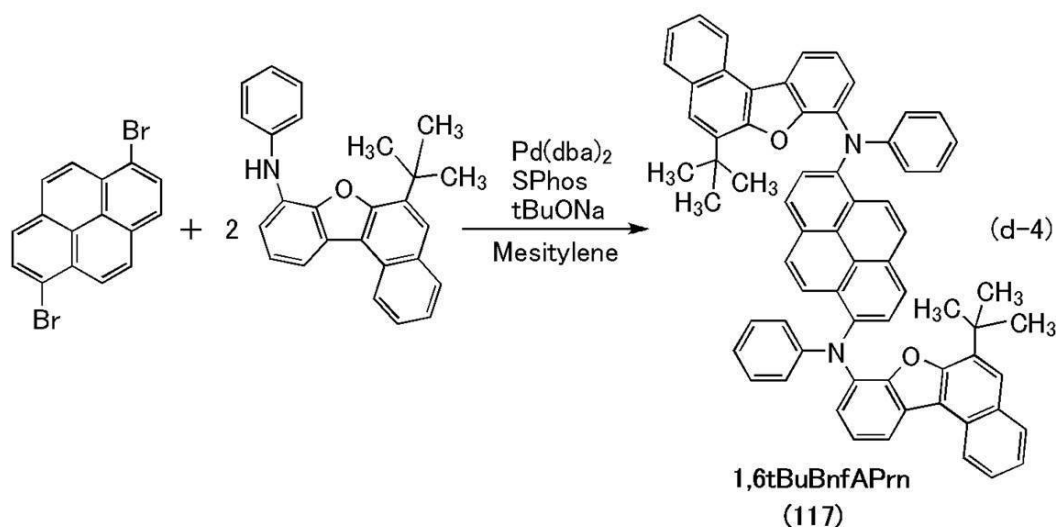
50

【0425】

攪拌後、トルエン30 mLを加えて加熱し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン：トルエン＝9：1から7：3までグラジエントをかけた）により精製したところ、目的物の黄色固体を得た。得られた黄色固体をトルエンにて再結晶したところ、目的物の黄色固体を0.24 g、収率40%で得た。ステップ4の合成スキームを下記（d-4）に示す。

【0426】

【化58】



【0427】

得られた黄色固体0.21 gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力 1.8×10^{-2} Paの条件で、黄色固体を330℃で8時間加熱して行った。昇華精製後、目的物の黄色固体を収量0.17 g、回収率81%で得た。

【0428】

また、上記ステップ4で得られた黄色固体の ^1H NMRによる測定結果を以下に示す。また、 ^1H NMRチャートを図26に示す。なお、図26（B）は、図26（A）における6.5 ppm～9.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。また、図26（C）は、図26（A）における0.5 ppm～3.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、1,6tBuBnfAPrn（構造式（117））が得られたことがわかった。

【0429】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : $\sigma = 8.59$ (d, $J = 8.8$ Hz, 2H)、8.27 (d, $J = 9.3$ Hz, 2H)、8.15 (d, $J = 7.8$ Hz, 2H)、8.04 (d, $J = 8.3$ Hz, 2H)、7.94–7.82 (m, 6H)、7.66–7.61 (m, 4H)、7.51–7.46 (m, 2H)、7.35–7.29 (m, 2H)、7.22–7.16 (m, 6H)、7.01–6.91 (m, 6H)、1.02 (s, 18H)。

【0430】

以下に、1,6tBuBnfAPrnのトルエン溶液及び固体薄膜の、吸収スペクトル及び発光スペクトルの測定結果を示す。測定方法は実施例1で示した方法と同様の方法で行った。

【0431】

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図27（A）に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペ

クトルおよび発光スペクトルの測定結果を図 27 (B) に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

【0432】

図 27 (A) の結果より、1, 6 tBuBnfAPrn のトルエン溶液では、424 nm 付近に吸収ピークが見られ、450 nm (励起波長 410 nm) に発光波長のピークが見られた。また、図 27 (B) の結果より、1, 6 tBuBnfAPrn の固体薄膜では、426 nm 付近に吸収ピークが見られ、460、495 nm 付近 (励起波長 410 nm) に発光波長のピークが見られた。

【実施例 7】

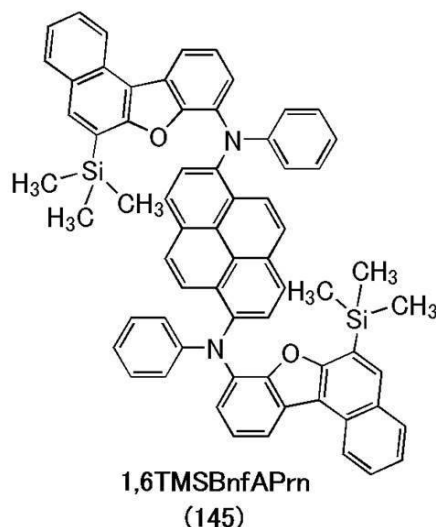
【0433】

＜合成例 6＞

本実施例では、実施の形態 1 の構造式 (145) で表される本発明の一態様である有機化合物、N, N' -ビス (ピレン-1, 6-ジイル) ビス (N-フェニル-6-トリメチルシリルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン) (略称: 1, 6 TMSBnfAPrn) の合成方法について説明する。なお、1, 6 TMSBnfAPrn の構造を以下に示す。

【0434】

【化 59】



【0435】

＜ステップ 1: 8-クロロ-6-トリメチルシリルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランの合成＞

1. 1 g (4.4 mmol) の 8-クロロベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランを 100 mL 三口フラスコに加え、フラスコ内を窒素置換した。ここに 20 mL のテトラヒドロフランを加え、-80℃で撹拌した。この溶液に 4.0 mL (6.2 mmol) の n-ブチルリチウム (1.6 mol/L、n-ヘキサン溶液) を滴下し、温度を室温に戻して窒素気流下で 2 時間撹拌した。撹拌後、得られた混合物の温度を -80℃とし、混合物に 1.1 mL (8.7 mmol) のクロロトリメチルシランの 10 mL テトラヒドロフラン溶液を加え、温度を徐々に室温に戻しながら 15 時間撹拌した。

【0436】

撹拌後、この混合物に炭酸水素ナトリウム水溶液を加え、水層をトルエンで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して褐色油状物を得た。

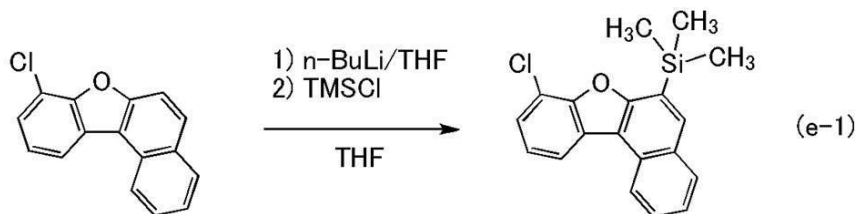
【0437】

得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン) により精

製したところ目的物の白色固体を 0.67 g、収率 47% で得た。ステップ 1 の合成スキームを下記 (e-1) に示す。

【0438】

【化60】



10

【0439】

また、上記ステップ 1 で得られた白色固体の ^1H NMR による測定結果を以下に示す。

【0440】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : $\sigma = 8.57$ (d, $J = 8.3$ Hz, 1H)、 $8.29 - 8.26$ (m, 1H)、 $8.05 - 8.02$ (m, 2H)、 $7.75 - 7.69$ (m, 1H)、 $7.58 - 7.44$ (m, 2H)、 7.41 (t, $J = 7.8$ Hz, 1H)、 0.55 (s, 9H)。

【0441】

<ステップ 2 : N-フェニル-6-トリメチルシリルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンの合成>

0.65 g (2.0 mmol) の 8-クロロ-6-トリメチルシリルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランと、0.23 g (2.5 mmol) のアニリンと 0.50 g (5.2 mmol) のナトリウム *tert*-ブトキシドを 200 mL 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に 15 mL のトルエンを加え、得られた混合物を減圧脱気した。この混合物に 0.30 mL (0.35 mmol) のトリ (*tert*-ブチル) ホスフィン (10 wt% ヘキサン溶液) と、0.52 g (1.5 mmol) の *n*-ブチル-ジアダマンチルホスフィンと、0.16 g (0.28 mmol) のビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) を加えた後、窒素気流下、 120°C で 18 時間攪拌した。

30

【0442】

攪拌後、得られた混合物にトルエン 300 mL を加えてから、フロリジル (和光純薬工業株式会社、カタログ番号 : 066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号 : 537-02305)、アルミナを通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、褐色油状物を得た。

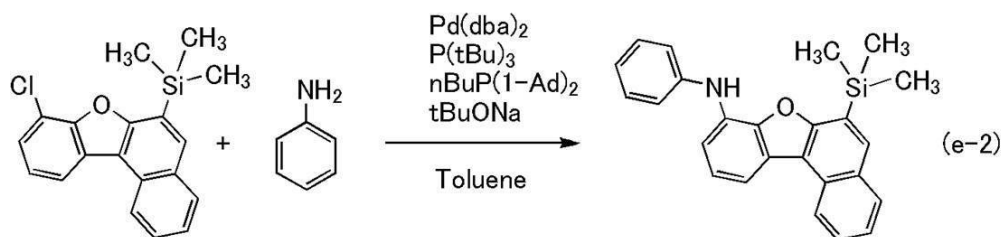
【0443】

この油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒 : ヘキサン : トルエン 4 : 1) により精製したところ、目的物の白色固体を 0.45 g、収率 59% で得た。ステップ 2 の合成スキームを下記 (e-2) に示す。

【0444】

40

【化 6 1】



10

【0 4 4 5】

また、上記ステップ2で得られた白色固体の ^1H NMRによる測定結果を以下に示す。

【0 4 4 6】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.62$ (d, $J = 8.3\text{ Hz}$, 1H)、 $8.04 - 7.94$ (m, 3H)、 $7.74 - 7.69$ (m, 1H)、 $7.57 - 7.51$ (m, 1H)、 $7.40 - 7.32$ (m, 4H)、 $7.27 - 7.23$ (m, 2H)、 $7.05 - 6.99$ (m, 1H)、 6.14 (br s, 1H)、 0.49 (s, 9H)。

【0 4 4 7】

<ステップ3: 1, 6-TMSBnfAPrnの合成>

【0 4 4 8】

0.21 g (0.58 mmol) の1, 6-ジブロモピレンと、0.45 g (0.88 mmol) のN-フェニル-6-トリメチルシリルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンと、0.23 g (1.8 mmol) のナトリウム t-ブトキシドと、60 mg (0.15 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 6'-ジメトキシ-1, 1'-ビフェニル (略称: SPhos) を200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に5 mLのメシチレンを加え、この混合物を減圧脱気した後、混合物に40 mg (70 μmol) のビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) を加え、この混合物を窒素気流下、 170°C で4時間攪拌した。

30

【0 4 4 9】

攪拌後、トルエン500 mLを加えて加熱し、フロリジル (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 537-02305)、アルミナを通して熱ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た黄色固体を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン: トルエン = 9: 1 から 7: 3 までグラジエントをかけた) により精製したところ、目的物の黄色固体を得た。得られた黄色固体をトルエンにて再結晶したところ、目的物の黄色固体を0.30 g、収率54%で得た。

【0 4 5 0】

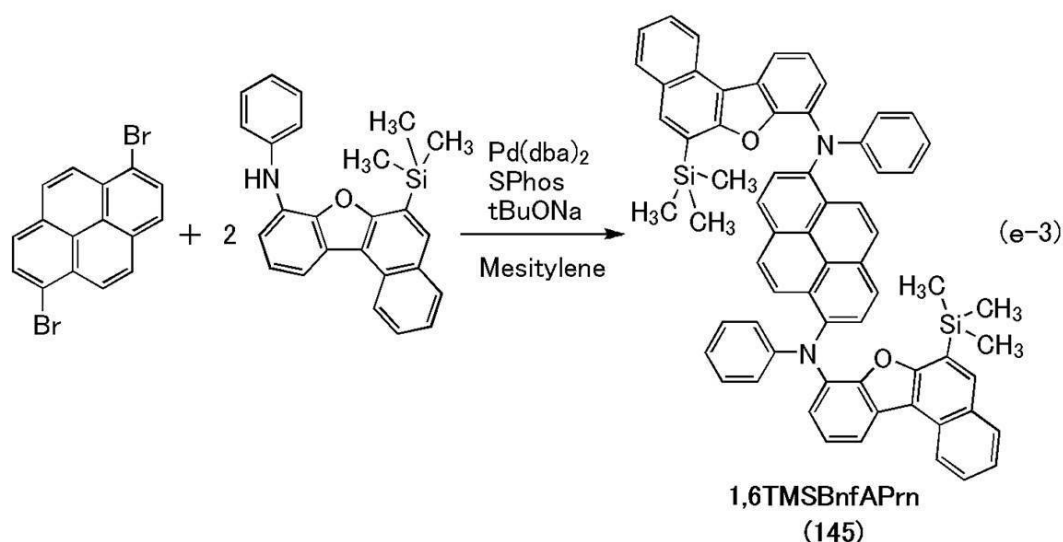
得られた黄色固体0.30 gをトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力 $2.0 \times 10^{-2}\text{ Pa}$ の条件で、黄色固体を 340°C で8時間加熱して行った。昇華精製後、目的物の黄色固体を収量0.22 g、回収率74%で得た。ステップ3の合成スキームを下記 (e-3) に示す。

40

【0 4 5 1】

50

【化 6 2】



【0452】

また、上記ステップ3で得られた黄色固体の ^1H NMRによる測定結果を以下に示す。また、 ^1H NMRチャートを図28に示す。なお、図28(B)は、図28(A)における6.5 ppm～9.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。また、図28(C)は、図28(A)における-0.5 ppm～2.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、1,6-TMSBnfAPrn (構造式(145)) が得られたことがわかった。

【0453】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : $\sigma = 8.62$ (d、 $J = 8.8$ Hz、2H)、8.26 (d、 $J = 9.3$ Hz、2H)、8.16–8.13 (m、2H)、8.05–7.98 (m、4H)、7.91–7.82 (m、6H)、7.72–7.67 (m、2H)、7.54–7.48 (m、2H)、7.31–7.26 (m、2H)、7.18–7.11 (m、6H)、6.94–6.89 (m、6H)、0.04 (s、18H)。

【0454】

以下に、1,6-TMSBnfAPrnのトルエン溶液及び固体薄膜の、吸収スペクトル及び発光スペクトルの測定結果を示す。測定方法は実施例1で示した方法と同様の方法で行った。

【0455】

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図29(A)に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図29(B)に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

【0456】

図29(A)の結果より、1,6-TMSBnfAPrnのトルエン溶液では、422 nm付近に吸収ピークが見られ、451 nm (励起波長415 nm) に発光波長のピークが見られた。また、図29(B)の結果より、1,6-TMSBnfAPrnの固体薄膜では、428 nm付近に吸収ピークが見られ、460、485 nm付近 (励起波長400 nm) に発光波長のピークが見られた。

【実施例8】

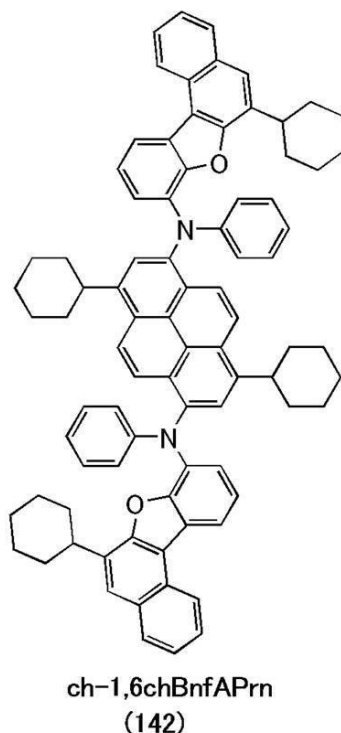
【0457】

《合成例7》

本実施例では、実施の形態 1 の構造式 (142) で表される本発明の一態様である有機化合物、N, N' - (3, 8 - ジシクロヘキシルピレン - 1, 6 - ジイル) ビス [N - フェニル - (6 - シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2 - d] フラン) - 8 - アミン] (略称: ch - 1, 6chBnfAPrn) の合成方法について説明する。なお、ch - 1, 6chBnfAPrn の構造を以下に示す。

【0458】

【化63】



【0459】

<ステップ 1: ch - 1, 6chBnfAPrn の合成>

1. 5 g (2.9 mmol) の 1, 6 - ジブromo - 3, 8 - ジシクロヘキシルピレンと、
2. 3 g (5.8 mmol) の N - フェニル - 6 - シクロヘキシルベンゾ [b] ナフト [1, 2 - d] フラン - 8 - アミンと、1. 1 g (11 mmol) のナトリウム t - ブトキシドと、60 mg (0.15 mmol) の 2 - ジシクロヘキシルホスフィノ - 2', 6' - ジメトキシ - 1, 1' - ビフェニル (略称: SPhos) を 200 mL 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に 30 mL のメシチレンを加え、この混合物を減圧脱気した後、混合物に 40 mg (70 μmol) のビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) を加え、この混合物を窒素気流下、170 °C で 5. 5 時間攪拌した。

【0460】

攪拌後、トルエン 2. 5 L を加えて加熱し、フロリジル (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 066 - 05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 537 - 02305)、アルミナを通して熱ろ過した。

【0461】

得られたろ液を濃縮して得た黄色固体を、シリカゲルクロマトグラフィー (展開溶媒: トルエン) により精製したところ、目的物の黄色固体を得た。得られた黄色固体をトルエンにて再結晶したところ、目的物の黄色固体を 2. 2 g、収率 67 % で得た。

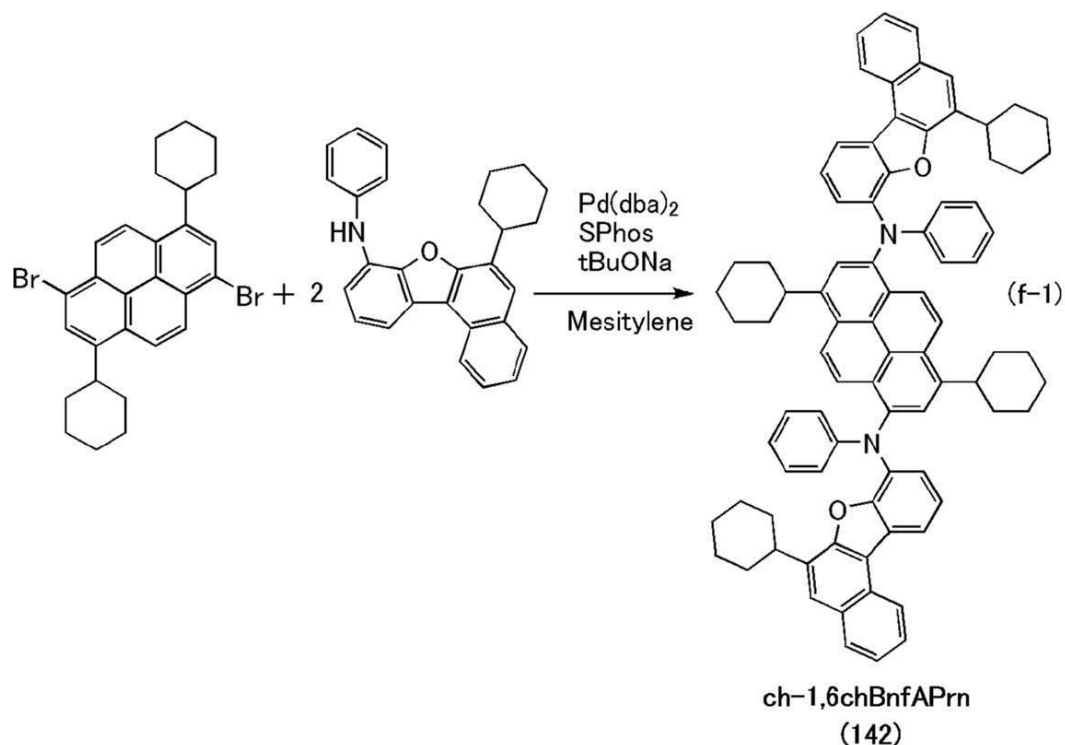
【0462】

得られた黄色固体 1. 3 g をトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力 2.9×10^{-2} Pa の条件で、黄色固体を 360 °C で 15 時間加熱して行った

。昇華精製後、目的物の黄色固体を収量 1.0 g、回収率 77% で得た。ステップ 1 の合成スキームを下記 (f-1) に示す。

【0463】

【化64】



【0464】

また、上記ステップ 1 で得られた黄色固体の ^1H NMR による測定結果を以下に示す。また、 ^1H NMR チャートを図 30 に示す。なお、図 30 (B) は、図 30 (A) における 6.5 ppm ~ 9.0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。また、図 30 (C) は、図 30 (A) における 1.0 ppm ~ 4.0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、ch-1,6chBnfAPrn (構造式 (142)) が得られたことがわかった。

【0465】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : σ = 8.59 (d, J = 8.3 Hz, 2H)、8.30 (d, J = 9.8 Hz, 2H)、8.15–8.09 (m, 4H)、7.92 (d, J = 7.8 Hz, 2H)、7.81 (s, 2H)、7.65–7.60 (m, 2H)、7.56 (s, 2H)、7.50–7.45 (m, 2H)、7.33–7.28 (m, 2H)、7.21–7.14 (m, 6H)、6.99–6.92 (m, 6H)、3.46 (m, 2H)、2.54 (m, 2H)、1.92–0.80 (m, 40H)。

【0466】

以下に、ch-1,6chBnfAPrn のトルエン溶液及び固体薄膜の、吸収スペクトル及び発光スペクトルの測定結果を示す。測定方法は実施例 1 で示した方法と同様の方法で行った。

【0467】

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図 31 (A) に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図 31 (B) に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

【0468】

図31(A)の結果より、ch-1, 6chBnfAPrnのトルエン溶液では、425 nm付近に吸収ピークが見られ、452 nm（励起波長410 nm）に発光波長のピークが見られた。また、図31(B)の結果より、ch-1, 6chBnfAPrnの固体薄膜では、427 nm付近に吸収ピークが見られ、460、505 nm付近（励起波長400 nm）に発光波長のピークが見られた。

【実施例9】

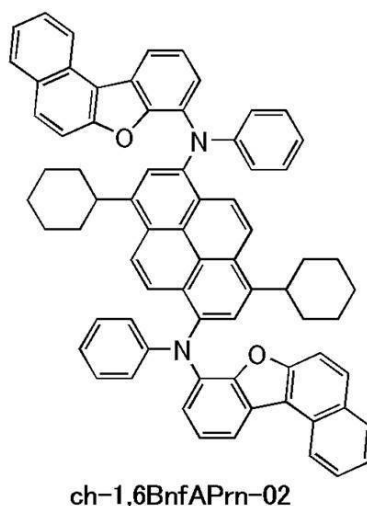
【0469】

《合成例8》

本実施例では、有機化合物、N, N'-(3, 8-ジシクロヘキシルピレン-1, 6-ジイル)ビス(N-フェニルベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン-8-アミン)（略称：ch-1, 6BnfAPrn-02）の合成方法について説明する。なお、ch-1, 6BnfAPrn-02の構造を以下に示す。

【0470】

【化65】



【0471】

＜ステップ1：1, 6-ジシクロヘキシルピレンの合成＞

2.0 g (5.6 mmol) の1, 6-ジブROMピレンと90 mg (0.19 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 4', 6'-トリイソプロピルビフェニル（略称：XPhos）を200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに30 mLのテトラヒドロフラン（略称：THF）を加え、この混合物を減圧脱気した後、70℃で攪拌した。この混合物に80 mg (87 μmol) のトリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム(0)（略称：Pd₂(dba)₃）を加え、24 mLのシクロヘキシルマグネシウムブロミド（1.0 mol/L テトラヒドロフラン溶液、24 mmol）を滴下し、滴下後、この混合物を窒素気流下、70℃で6.5時間攪拌した。

【0472】

攪拌後、この混合物を0℃の塩酸（1 mol/L）に滴下し、得られた混合物の水層をトルエンで抽出した。得られた抽出液と有機層を合わせ、水と、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して黄色油状物を得た。

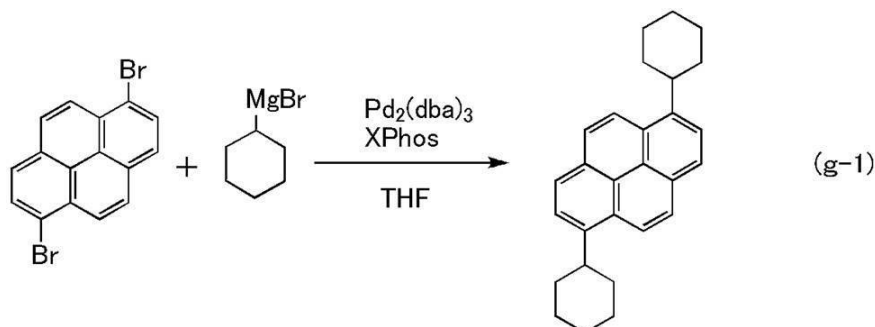
【0473】

得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン）により精製したところ、黄白色固体を1.47 g得た。この固体を再結晶により精製し、目的の白色固体を0.85 g、収率42%で得た。ステップ1の合成スキームを下記（g-1）に

示す。

【0474】

【化66】



10

【0475】

また、上記ステップ1で得られた白色固体の ^1H NMRによる測定結果を以下に示す。

【0476】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.32$ (d, $J = 9.3$ Hz, 2H)、 8.14 (d, $J = 8.3$ Hz, 2H)、 8.06 (d, $J = 9.3$ Hz, 2H)、 7.96 (d, $J = 7.8$ Hz, 2H)、 $3.67 - 3.60$ (m, 2H)、 $2.13 - 1.39$ (m, 20H)。

20

【0477】

<ステップ2: 1,6-ジブromo-3,8-ジシクロヘキシルピレンの合成>

5.1 g (14 mmol) の1,6-ジシクロヘキシルピレンを300 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。ここに80 mLのN,N-ジメチルホルムアミド(略称: DMF)を加え、 110°C で撹拌した。ここに7.7 g (43 mmol)のN-ブromosuccinimide(略称: NBS)を加え、 80°C で23時間撹拌した。

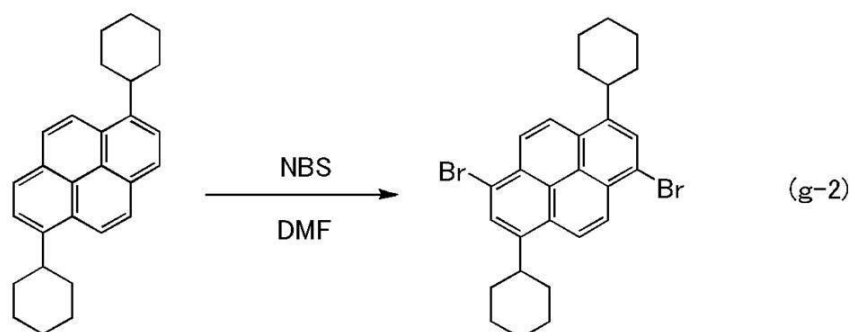
【0478】

撹拌後、この混合物に水を加え、析出した固体を吸引濾過にて濾別した。得られた茶白色固体をメタノールで洗浄し、この固体をトルエンにて再結晶したところ、目的物の茶白色固体を3.1 g、収率76%で得た。ステップ2の合成スキームを下記(g-2)に示す。

30

【0479】

【化67】



40

【0480】

また、上記ステップ2で得られた茶白色固体の ^1H NMRによる測定結果を以下に示す。

【0481】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): $\sigma = 8.47$ (d, $J = 9.8$ Hz, 2H)、 8.36 (d, $J = 9.3$ Hz, 2H)、 8.20 (s, 2H)、 $3.64 - 3.56$ (m, 2H)、 $2.12 - 1.57$ (m, 20H)。

50

【0482】

<ステップ3：N-フェニルーベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンの合成>

1. 1 g (4.4 mmol) の8-クロロベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランと、0.49 g (5.3 mmol) のアニリンと1.0 g (10 mmol) のナトリウム テーブトキシドを200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に25 mLのトルエンを加え、得られた混合物を減圧脱気した。この混合物に0.26 g (0.72 mmol) のn-ブチル-ジアダマンチルホスフィンと80 mg (0.14 mmol) のビス(ジベンジリデンアセトン) パラジウム(0)を加えた後、窒素気流下、120℃で10時間撹拌した。

10

【0483】

撹拌後、得られた混合物にトルエン300 mLを加えてから、フロリジール(和光純薬工業株式会社、カタログ番号：066-05265)、セライト(和光純薬工業株式会社、カタログ番号：537-02305)、アルミナを通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮し、褐色油状物を得た。

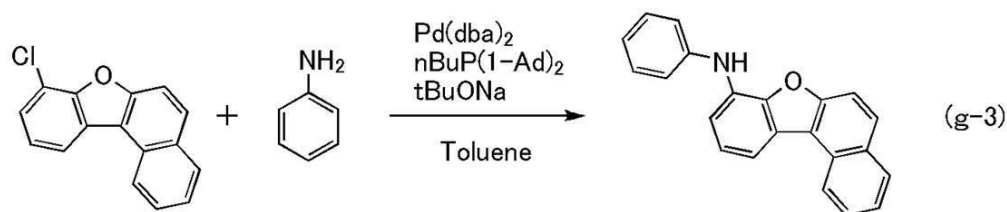
【0484】

この油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒：ヘキサン：トルエン4：1)により精製したところ、目的物の白色固体を0.76 g、収率57%で得た。ステップ3の合成スキームを下記(g-3)に示す。

【0485】

20

【化68】



30

【0486】

<ステップ4：ch-1, 6BnfAPrn-02の合成>

0.64 g (1.2 mmol) の1,6-ジブromo-3,8-ジシクロヘキシルピレンと、0.76 g (2.5 mmol) のN-フェニルーベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミンと、0.50 g (5.2 mmol) のナトリウム テーブトキシドと、60 mg (0.15 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノー2',6'-ジメトキシ-1,1'-ビフェニル(略称：SPhos)を200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に15 mLのメシチレンを加え、この混合物を減圧脱気した後、混合物に40 mg (70 μmol) のビス(ジベンジリデンアセトン) パラジウム(0)を加え、この混合物を窒素気流下、170℃で6時間撹拌した。

40

【0487】

撹拌後、トルエン500 mLを加えて加熱し、フロリジール(和光純薬工業株式会社、カタログ番号：066-05265)、セライト(和光純薬工業株式会社、カタログ番号：537-02305)、アルミナを通して熱時ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た黄色固体を、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製したところ、目的物の黄色固体を得た。得られた黄色固体をトルエンにて再結晶したところ、目的物の黄色固体を0.95 g、収率79%で得た。

【0488】

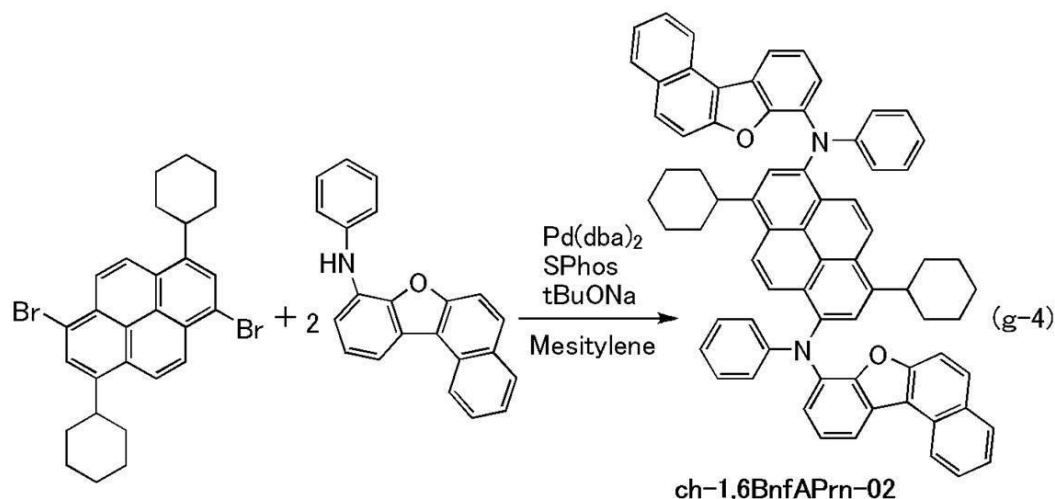
得られた黄色固体0.95 gをトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力 2.3×10^{-2} Paの条件で、黄色固体を350℃で7時間加熱して行った

50

。昇華精製後、目的物の黄色固体を収量 0.65 g、回収率 68% で得た。ステップ 4 の合成スキームを下記 (g-4) に示す。

【0489】

【化69】



10

20

【0490】

また、上記ステップ 4 で得られた黄色固体の ^1H NMR による測定結果を以下に示す。また、 ^1H NMR チャートを図 32 に示す。なお、図 32 (B) は、図 32 (A) における 6.5 ppm ~ 9.0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。また、図 32 (C) は、図 32 (A) における 1.0 ppm ~ 4.0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。この結果から、ch-1,6BnfAPrn-02 が得られたことがわかった。

【0491】

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz) : $\sigma = 8.64 - 8.61$ (m, 2H)、8.32 (d, $J = 9.3$ Hz, 2H)、8.16 - 8.12 (m, 4H)、8.01 - 7.96 (m, 4H)、7.87 - 7.84 (m, 2H)、7.73 - 7.68 (m, 2H)、7.59 - 7.50 (m, 4H)、7.33 - 7.28 (m, 2H)、7.21 - 7.14 (m, 6H)、6.94 - 6.85 (m, 6H)、3.49 (m, 2H)、2.01 - 1.28 (m, 20H)。

30

【0492】

以下に、ch-1,6BnfAPrn-02 の固体薄膜及びトルエン溶液の、吸収スペクトル及び発光スペクトルの測定結果を示す。測定方法は実施例 1 で示した方法と同様の方法で行った。

【0493】

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図 33 (A) に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図 33 (B) に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

40

【0494】

図 33 (A) の結果より、ch-1,6BnfAPrn-02 のトルエン溶液では、420 nm 付近に吸収ピークが見られ、453 nm (励起波長 415 nm) に発光波長のピークが見られた。また、図 33 (B) の結果より、ch-1,6BnfAPrn-02 の固体薄膜では、423 nm 付近に吸収ピークが見られ、464、512 nm 付近 (励起波長 400 nm) に発光波長のピークが見られた。

【実施例 10】

50

【0495】

本実施例では、実施例1～3、実施例5～9で示した有機化合物について、量子収率測定を行った。測定では、各実施例において、発光スペクトルの測定に用いたトルエン溶液を用いた。また、浜松ホトニクス株式会社製、絶対PL量子収率測定装置（Quantaurus-QY C11347-01）を用いて測定を行った。なお、励起波長は、350 nmから450 nmの波長を用いて10 nm間隔で行い、測定範囲における最大値を量子収率とした。

【0496】

測定結果を表3に示す。表3からわかるとおり、本発明の発光材料は非常に高い量子収率を示すことが明らかとなり、発光材料として発光素子に好適に使用できる。

【0497】

【表3】

	化合物名	量子収率(%)
合成例1	1,6chBnfAPrn	82
合成例2	1,6oMechBnfAPrn	85
合成例3	1,6iPrBnfAPrn	72
合成例4	1,6nPrBnfAPrn	86
合成例5	1,6tBuBnfAPrn	86
合成例6	1,6TMSBnfAPrn	84
合成例7	ch-1,6chBnfAPrn	94
合成例8	ch-1,6BnfAPrn-02	94

【実施例11】

【0498】

本実施例では、実施例1～3、実施例5～9においてそれぞれ示した合成例1～合成例8で合成された有機化合物のHOMO準位およびLUMO準位について、サイクリックボルタメトリ（CV）測定を元に算出した。算出方法および算出結果を以下に示す。

【0499】

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または600C）を用いた。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）アルドリッチ製、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100 mmol/Lの濃度となるように溶解させ、さらに測定対象を2 mmol/Lの濃度となるように溶解させて調製した。

【0500】

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（5 cm））を、参照電極としてはAg/Ag⁺電極（ビー・エー・エス（株）製、RE7非水溶媒系参照電極）をそれぞれ用いた。なお、測定は室温（20～25℃）で行った。

【0501】

また、CV測定時のスキャン速度は、0.1 V/secに統一し、参照電極に対する酸化電位E_a [V] および還元電位E_c [V] を測定した。E_aは酸化-還元波の中間電位とし、E_cは還元-酸化波の中間電位とした。ここで、本実施例で用いる参照電極の真空準位に対するポテンシャルエネルギーは、-4.94 [eV] であることが分かっているため、HOMO準位 [eV] = -4.94 - E_a、LUMO準位 [eV] = -4.94 - E_c という式から、HOMO準位およびLUMO準位をそれぞれ求めることができる。測定結果を表4に示す。

【0502】

【表 4】

	化合物名	HOMO	LUMO
合成例1	1,6chBnfAPrn	-5.46	-2.66
合成例2	1,6oMechBnfAPrn	-5.36	-2.60
合成例3	1,6iPrBnfAPrn	-5.47	-2.65
合成例4	1,6nPrBnfAPrn	-5.45	-2.65
合成例5	1,6tBuBnfAPrn	-5.48	-2.66
合成例6	1,6TMSBnfAPrn	-5.44	-2.66
合成例7	ch-1,6chBnfAPrn	-5.40	-2.60
合成例8	ch-1,6BnfAPrn-02	-5.39	-2.62

10

【0503】

表4から、本発明の一態様である有機化合物は、比較として合成した合成例8に示す有機化合物、ch-1, 6BnfAPrn-02と比べて、HOMOの準位が深くなっていることがわかる。これは、本発明の一態様である有機化合物が、ベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン骨格にアルキル基を有することにより、これを有さないch-1, 6BnfAPrn-02と比較してHOMOの準位が深くなり、その結果バンドギャップ(BG)が広がり、短波長の発光を得ることが可能となったと考えられる。但し、本発明の一態様であり、合成例2に示した、1, 6oMechBnfAPrnについては、前記一般式(G1)におけるAr1がメチル基を有するため、メチル基による電子供与性の効果としてHOMOの準位が他の合成例よりも浅くなったと考えられる。

20

【実施例12】

【0504】

本実施例では、本発明の一態様である発光素子として、実施例7で説明した、1, 6TMSBnfAPrn(構造式(145))を発光層に用いた発光素子3を作製し、実施例5で説明した、1, 6nPrBnfAPrn(構造式(118))を発光層に用いた発光素子4を作製し、実施例6で説明した、1, 6tBuBnfAPrn(構造式(117))を発光層に用いた発光素子5を作製し、その特性について測定した結果を示す。

【0505】

なお、本実施例で用いる発光素子の素子構造は、実施例4で示した図17と同様の構造であるが、素子構造を構成する各層の具体的な構成については表5に示す通りである。また、本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

30

【0506】

40

50

【表 5】

	第1 の電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発光層	電子 輸送層		電子 注入層	第2 の電極
発光素子 3	ITSO (70nm)	PCPPn:MoO _x (4:2 10nm)	PCPPn (30nm)	*	cgDBCzPA (15nm)	NBphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
発光素子 4	ITSO (70nm)	PCPPn:MoO _x (4:2 10nm)	PCPPn (30nm)	**	cgDBCzPA (15nm)	NBphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
発光素子 5	ITSO (70nm)	PCPPn:MoO _x (4:2 10nm)	PCPPn (30nm)	***	cgDBCzPA (15nm)	NBphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)

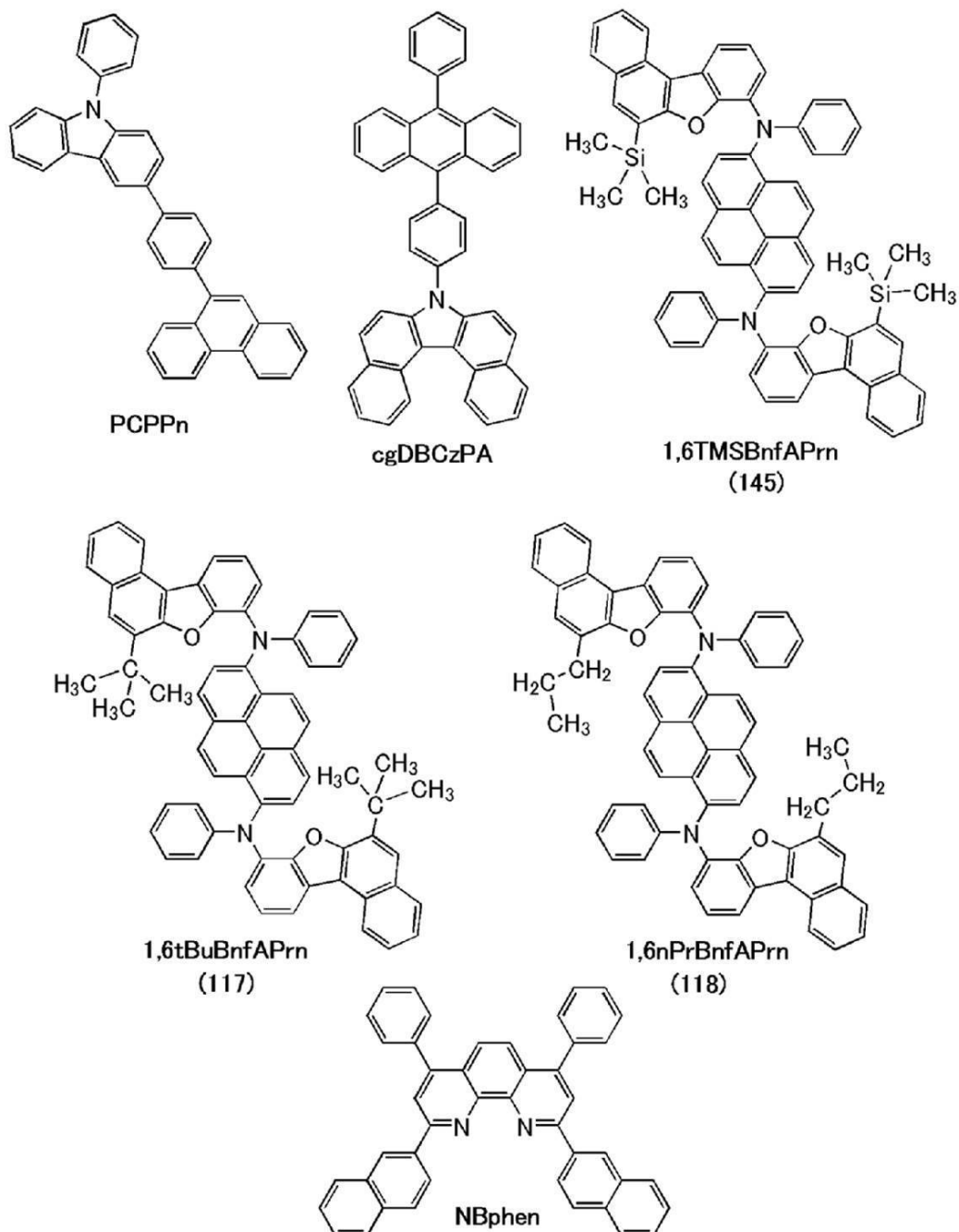
* cgDBCzPA:1,6TMSBnfAPrn (1:0.03 25nm)

** cgDBCzPA:1,6nPrBnfAPrn (1:0.03 25nm)

*** cgDBCzPA:1,6tBuBnfAPrn (1:0.03 25nm)

【 0 5 0 7 】

【化 7 0】



【 0 5 0 8】

≪発光素子の動作特性≫

作製した発光素子 3 ～ 5 の動作特性について測定した。なお、測定は室温で行った。また、結果を図 3 4 ～ 図 3 7 に示す。

【 0 5 0 9】

また、1 0 0 0 c d / m² 付近における発光素子の主な初期特性値を以下の表 6 に示す。

【 0 5 1 0】

10

20

30

40

50

【表 6】

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度(x,y)	輝度 (cd/m ²)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)	外部量子効率 (%)
発光素子 3	3.2	0.45	11	(0.14,0.12)	1100	10	10	10
発光素子 4	3.2	0.42	11	(0.14,0.11)	1100	10	10	11
発光素子 5	3.1	0.32	8.1	(0.14,0.11)	830	10	10	11

【0511】

上記結果から、本実施例で作製した発光素子3、発光素子4、および発光素子5は、いずれも外部量子効率が10%以上であり、良好な青色発光を呈する高効率な素子特性を有することがわかる。

【0512】

また、各発光素子に12.5mA/cm²の電流密度で電流を流した際の発光スペクトルを図38に示す。図38に示す通り、各発光素子の発光スペクトルは、475nmから458nm付近にピークを有しており、発光層913に含まれる発光物質の発光に由来していることが示唆される。また、各発光スペクトルは、半値幅は40nmから45nmであり、非常にシャープな形状を有するため、これらの発光素子は非常に深い青色の色度を示すことがわかる。

【実施例13】

【0513】

本実施例では、本発明の一態様である発光素子として、実施例8で説明した、ch-1, 6chBnfAPrn (構造式(142))を発光層に用いた発光素子6を作製し、比較のための発光素子として、実施例9で説明した、ch-1, 6BnfAPrn-02を発光層に用いた比較発光素子7を作製し、その特性について測定した結果を示す。

【0514】

なお、本実施例で用いる発光素子の素子構造は、実施例4で示した図17と同様の構造であるが、素子構造を構成する各層の具体的な構成については表7に示す通りである。また、本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

【0515】

【表 7】

	第1 の電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発光層	電子 輸送層		電子 注入層	第2 の電極
発光素子 6	ITSO (70nm)	PCPPn:MoOx (4:2 10nm)	PCPPn (30nm)	*	cgDBCzPA (15nm)	NBphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
比較 発光素子 7	ITSO (70nm)	PCPPn:MoOx (4:2 10nm)	PCPPn (30nm)	**	cgDBCzPA (15nm)	NBphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)

* cgDBCzPA: ch-1,6chBnfAPrn (1:0.03 25nm)

** cgDBCzPA: ch-1,6BnfAPrn-02 (1:0.03 25nm)

10

20

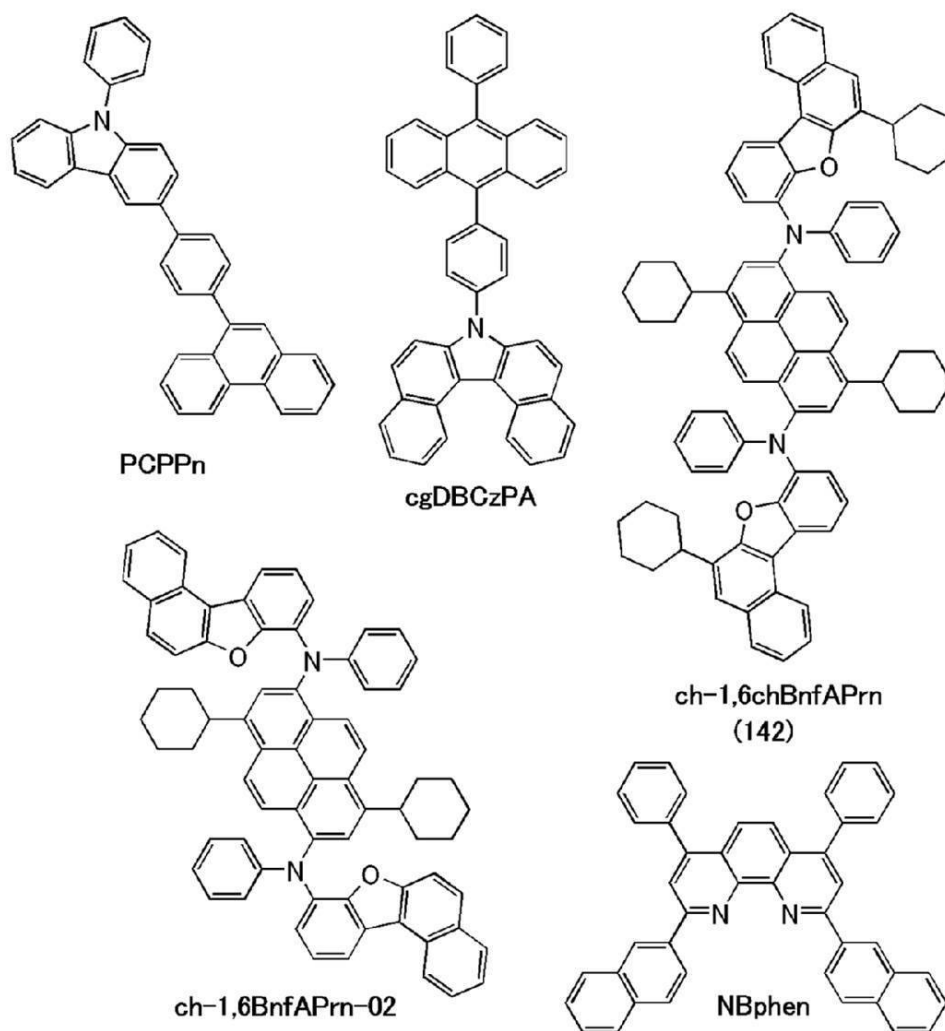
30

40

50

【 0 5 1 6 】

【 化 7 1 】



10

20

30

【 0 5 1 7 】

《発光素子の動作特性》

作製した発光素子 6 および比較発光素子 7 の動作特性について測定した。なお、測定は室温で行った。また、結果を図 3 9 ～ 図 4 2 に示す。

【 0 5 1 8 】

また、 1000 cd/m^2 付近における発光素子の主な初期特性値を以下の表 8 に示す。

【 0 5 1 9 】

40

50

【表 8】

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度(x,y)	輝度 (cd/m ²)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)	外部量子効率 (%)
発光素子 6	3.1	0.32	7.9	(0.14,0.12)	830	11	11	11
比較 発光素子 7	3.1	0.23	5.8	(0.14,0.16)	750	13	13	11

10

【0520】

上記結果から、本実施例で作製した本発明の一態様である発光素子6は、外部量子効率が10%以上であり、色度も(0.14, 0.12)と色純度の良い青色発光を示す高効率な素子特性を示すことがわかる。

【0521】

また、各発光素子に12.5 mA/cm²の電流密度で電流を流した際の発光スペクトルを図43に示す。図43に示す通り、発光素子6の発光スペクトルは、458 nm付近にピークを有しており、発光層913に含まれる、*ch-1*, 6*chBnfAPrn*の発光に由来していることが示唆される。また、ベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン骨格にアルキル基を有さない*ch-1*, 6*BnfAPrn-02*を用いた、比較発光素子7と、ベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン骨格にアルキル基を有する*ch-1*, 6*chBnfAPrn*を用いた発光素子6の発光スペクトルを比べると、発光ピーク波長が比較発光素子7で463 nmであるのに対し、発光素子6では459 nmと短波長シフトした。また、半値幅を比較すると、比較発光素子7の半値幅が46 nmであるのに対し、発光素子6の半値幅は43 nmであり、発光素子6の方が発光スペクトルの半値幅が狭く、形状が狭線化されたことがわかる。この結果から、本発明の一態様である発光素子6は、色純度の高い青色発光を呈していることがわかる。

20

【0522】

次に、本実施例で作製した発光素子6および比較発光素子7の色度(x, y)について、色彩輝度計(トプコン、BM-5A)を用いて測定した結果を図44に示す。図44の結果より、本発明の一態様である発光素子6は、比較発光素子7に比べてより深い青色の色度を示すことがわかる。従って、ベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン骨格にアルキル基を有することにより、色度改善への効果が非常に大きいことが示された。従って、本発明の一態様である有機化合物、及びそれを用いた発光素子は、ディスプレイ用の青色発光素子として、特に4K及び8Kディスプレイなどに好適である。

30

【符号の説明】

【0523】

- 101 第1の電極
- 102 第2の電極
- 103 EL層
- 103a、103b EL層
- 104 電荷発生層
- 111、111a、111b 正孔注入層
- 112、112a、112b 正孔輸送層
- 113、113a、113b 発光層
- 114、114a、114b 電子輸送層
- 115、115a、115b 電子注入層
- 201 第1の基板

40

50

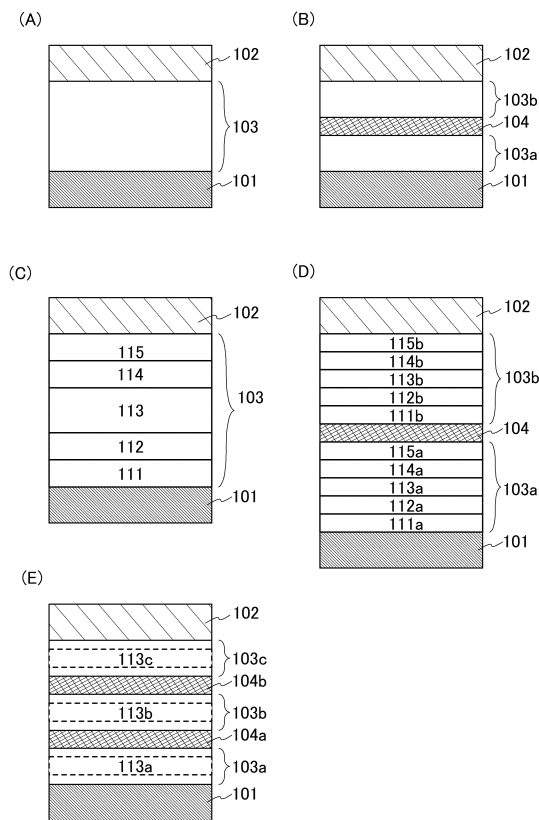
2 0 2	トランジスタ (F E T)	
2 0 3 R、2 0 3 G、2 0 3 B、2 0 3 W	発光素子	
2 0 4	E L 層	
2 0 5	第 2 の基板	
2 0 6 R、2 0 6 G、2 0 6 B	カラーフィルタ	
2 0 6 R'、2 0 6 G'、2 0 6 B'	カラーフィルタ	
2 0 7	第 1 の電極	
2 0 8	第 2 の電極	
2 0 9	黒色層 (ブラックマトリックス)	
2 1 0 R、2 1 0 G	導電層	10
3 0 1	第 1 の基板	
3 0 2	画素部	
3 0 3	駆動回路部 (ソース線駆動回路)	
3 0 4 a、3 0 4 b	駆動回路部 (ゲート線駆動回路)	
3 0 5	シール材	
3 0 6	第 2 の基板	
3 0 7	引き回し配線	
3 0 8	F P C	
3 0 9	F E T	
3 1 0	F E T	20
3 1 1	F E T	
3 1 2	F E T	
3 1 3	第 1 の電極	
3 1 4	絶縁物	
3 1 5	E L 層	
3 1 6	第 2 の電極	
3 1 7	発光素子	
3 1 8	空間	
9 0 0	基板	
9 0 1	第 1 の電極	30
9 0 2	E L 層	
9 0 3	第 2 の電極	
9 1 1	正孔注入層	
9 1 2	正孔輸送層	
9 1 3	発光層	
9 1 4	電子輸送層	
9 1 5	電子注入層	
4 0 0 0	照明装置	
4 0 0 1	基板	
4 0 0 2	発光素子	40
4 0 0 3	基板	
4 0 0 4	第 1 の電極	
4 0 0 5	E L 層	
4 0 0 6	第 2 の電極	
4 0 0 7	電極	
4 0 0 8	電極	
4 0 0 9	補助配線	
4 0 1 0	絶縁層	
4 0 1 1	封止基板	
4 0 1 2	シール材	50

4 0 1 3	乾燥剤	
4 0 1 5	拡散板	
4 1 0 0	照明装置	
4 2 0 0	照明装置	
4 2 0 1	基板	
4 2 0 2	発光素子	
4 2 0 4	第 1 の電極	
4 2 0 5	E L 層	
4 2 0 6	第 2 の電極	
4 2 0 7	電極	10
4 2 0 8	電極	
4 2 0 9	補助配線	
4 2 1 0	絶縁層	
4 2 1 1	封止基板	
4 2 1 2	シール材	
4 2 1 3	バリア膜	
4 2 1 4	平坦化膜	
4 2 1 5	拡散板	
4 3 0 0	照明装置	
5 1 0 1	ライト	20
5 1 0 2	ホイール	
5 1 0 3	ドア	
5 1 0 4	表示部	
5 1 0 5	ハンドル	
5 1 0 6	シフトレバー	
5 1 0 7	座席シート	
5 1 0 8	インナーリアビューミラー	
7 0 0 0	筐体	
7 0 0 1	表示部	
7 0 0 2	第 2 表示部	30
7 0 0 3	スピーカ	
7 0 0 4	L E D ランプ	
7 0 0 5	操作キー	
7 0 0 6	接続端子	
7 0 0 7	センサ	
7 0 0 8	マイクロフォン	
7 0 0 9	スイッチ	
7 0 1 0	赤外線ポート	
7 0 1 1	記録媒体読込部	
7 0 1 2	支持部	40
7 0 1 3	イヤホン	
7 0 1 4	アンテナ	
7 0 1 5	シャッターボタン	
7 0 1 6	受像部	
7 0 1 8	スタンド	
7 0 2 0	カメラ	
7 0 2 1	外部接続部	
7 0 2 2、7 0 2 3	操作用ボタン	
7 0 2 4	接続端子	
7 0 2 5	バンド	50

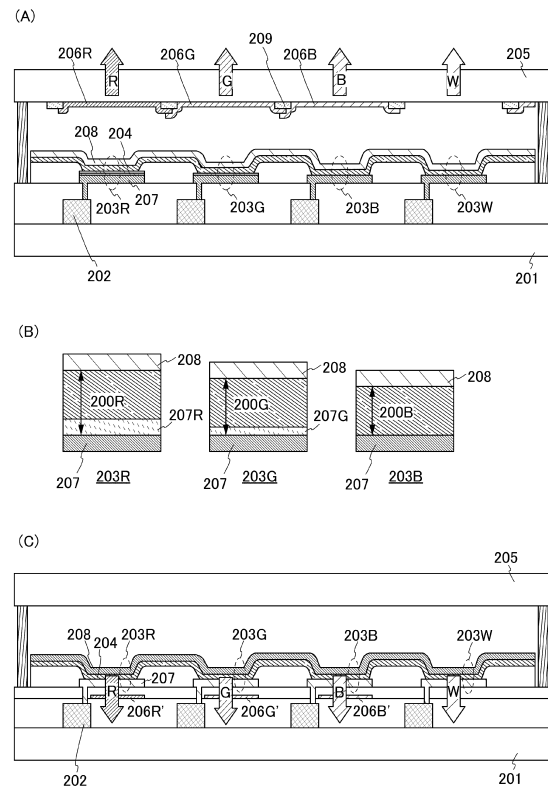
- 7 0 2 6 留め金
- 7 0 2 7 時刻を表すアイコン
- 7 0 2 8 その他のアイコン
- 8 0 0 1 照明装置
- 8 0 0 2 照明装置
- 8 0 0 3 照明装置
- 8 0 0 4 照明装置
- 9 3 1 0 携帯情報端末
- 9 3 1 1 表示部
- 9 3 1 2 表示領域
- 9 3 1 3 ヒンジ
- 9 3 1 5 筐体

【図面】

【図 1】



【図 2】



10

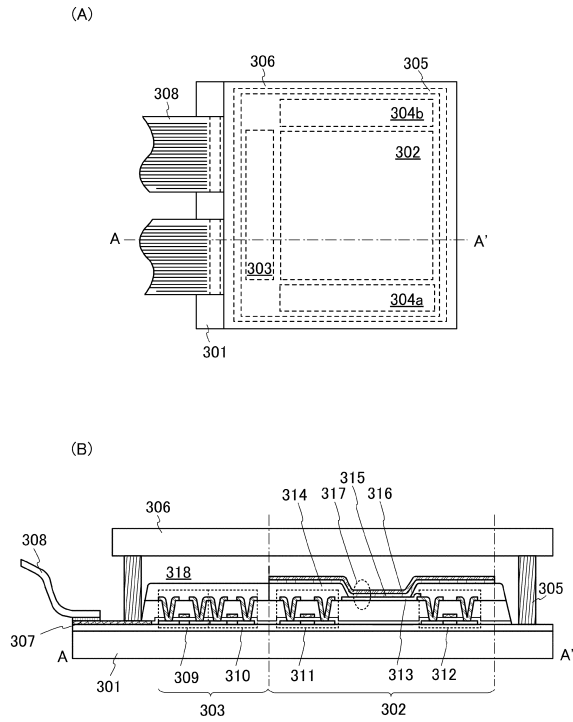
20

30

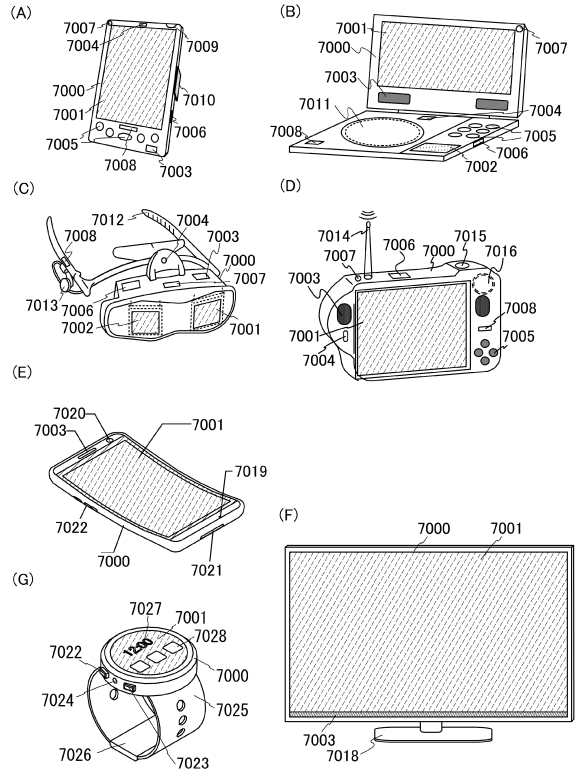
40

50

【図 3】



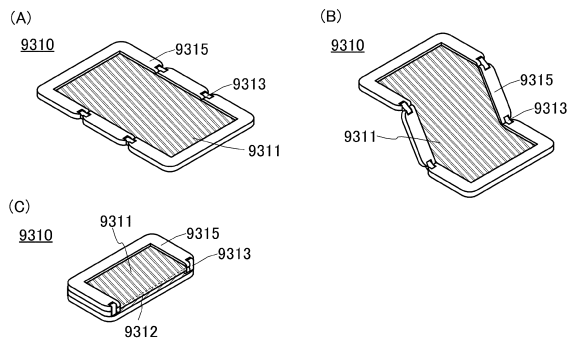
【図 4】



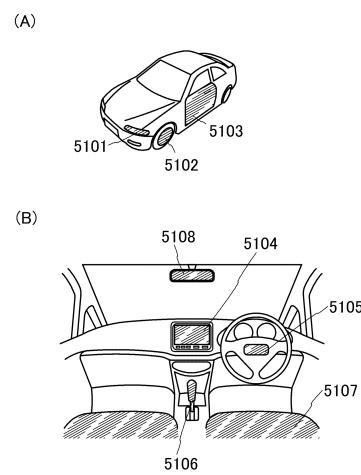
10

20

【図 5】



【図 6】

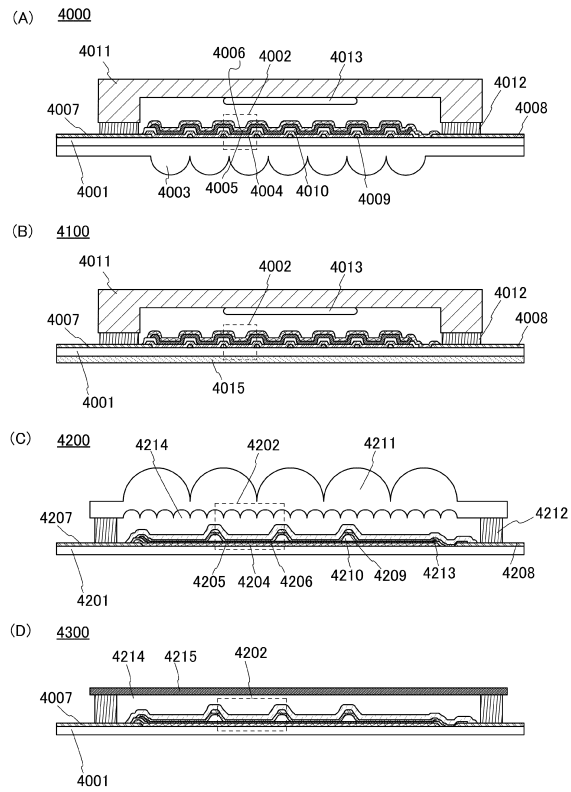


30

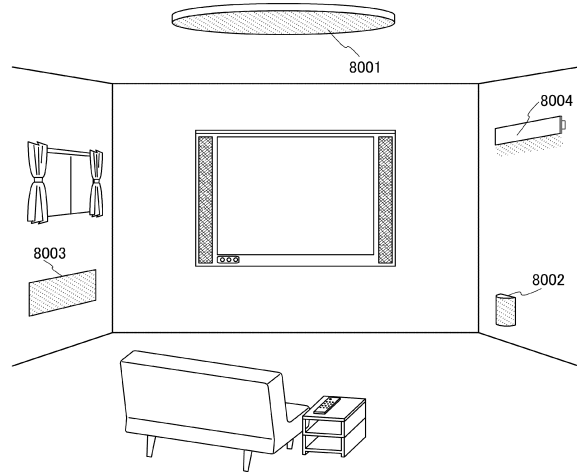
40

50

【図 7】



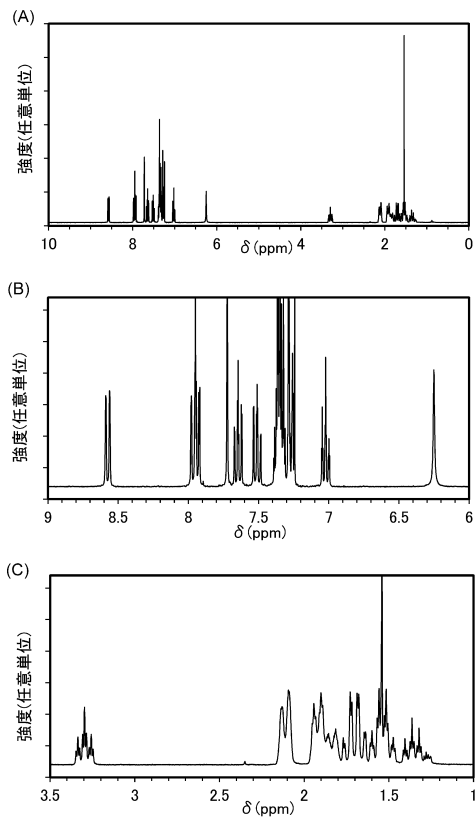
【図 8】



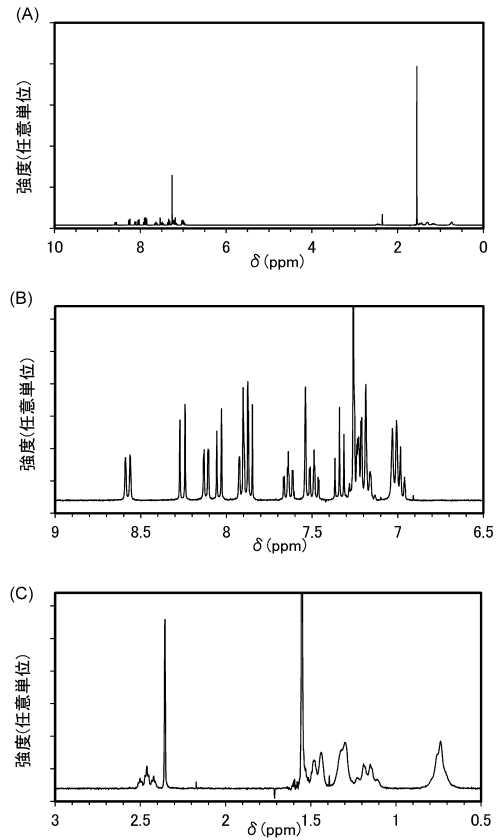
10

20

【図 9】



【図 10】

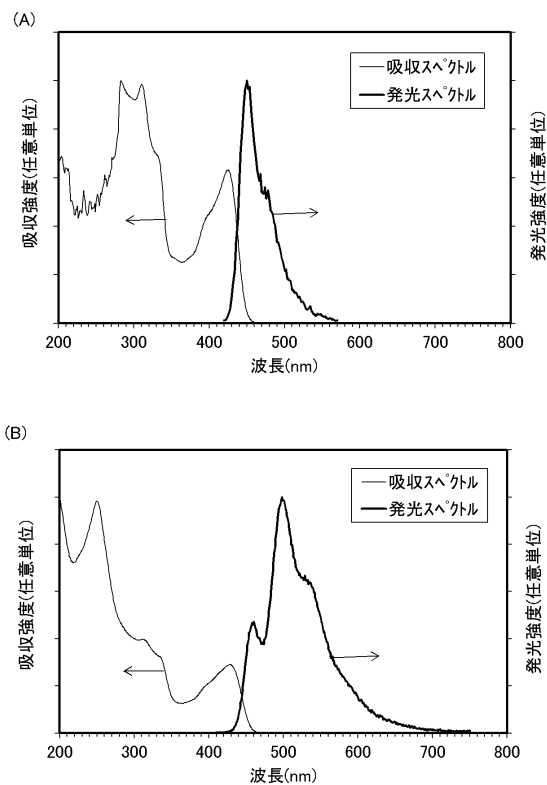


30

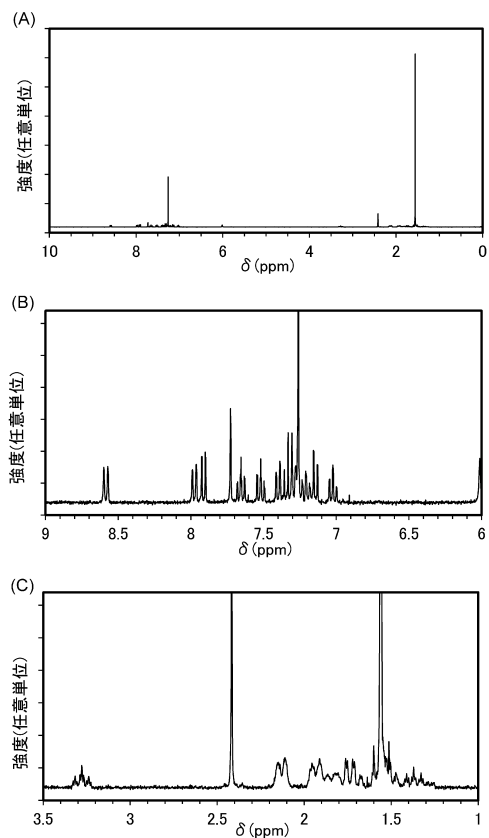
40

50

【図 1 1】



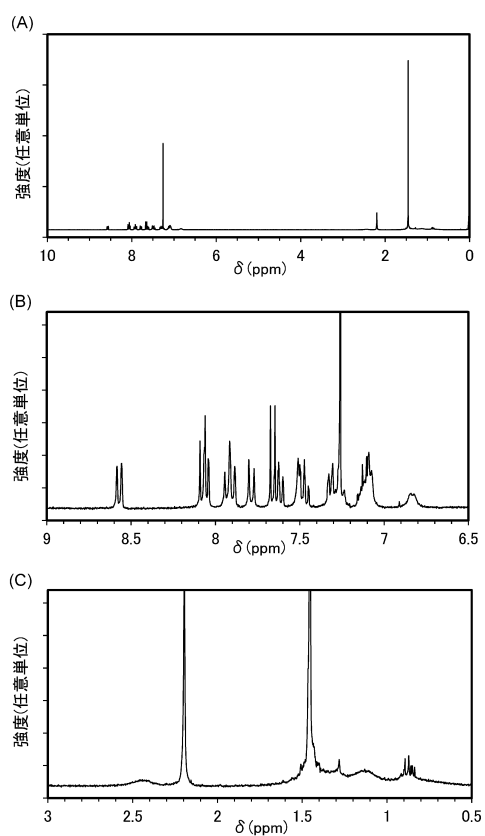
【図 1 2】



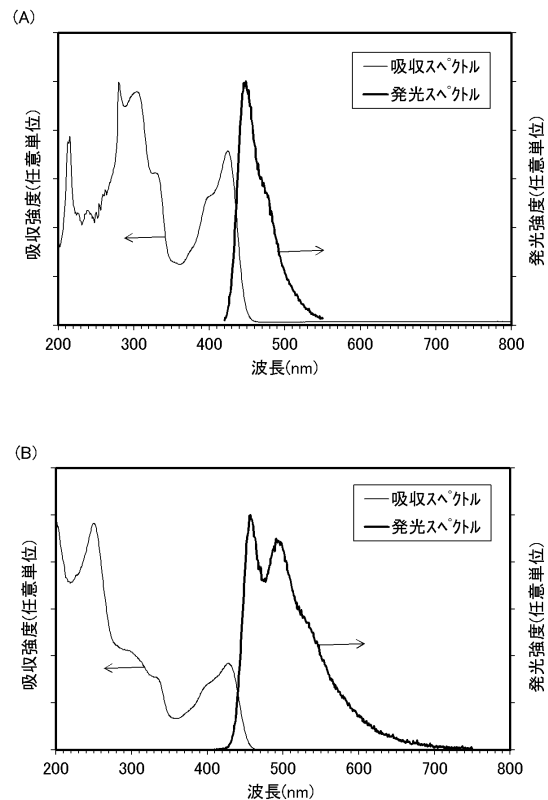
10

20

【図 1 3】



【図 1 4】

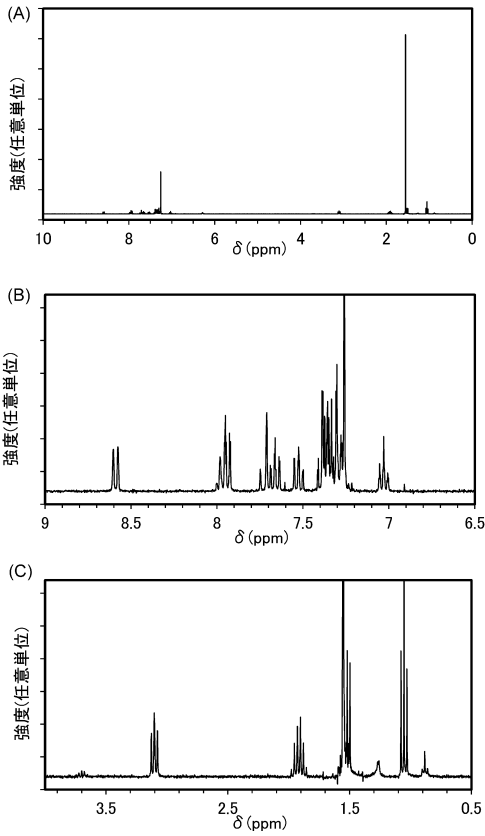


30

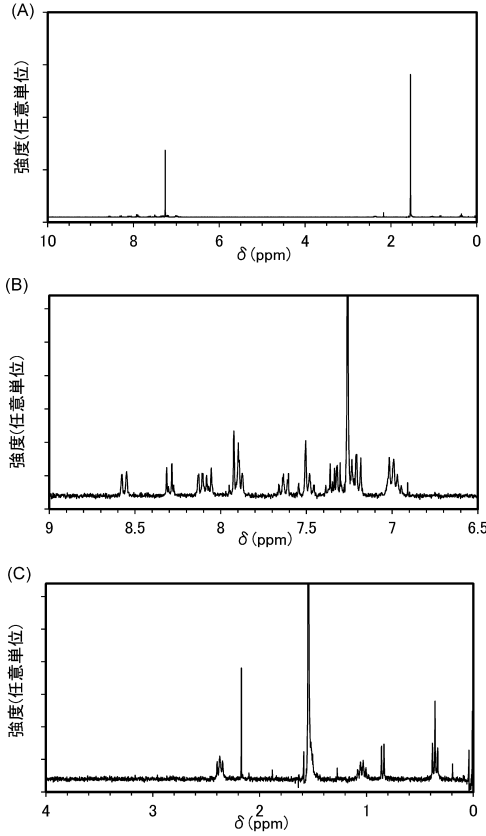
40

50

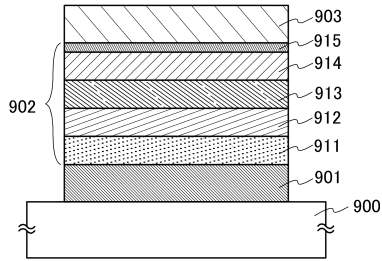
【図 1 5】



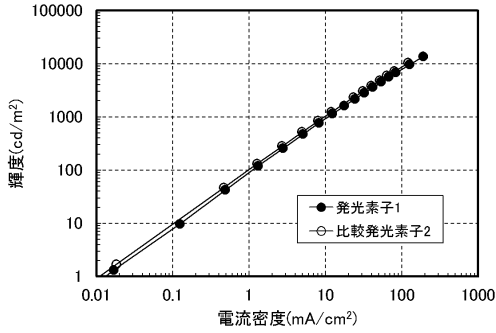
【図 1 6】



【図 1 7】



【図 1 8】



10

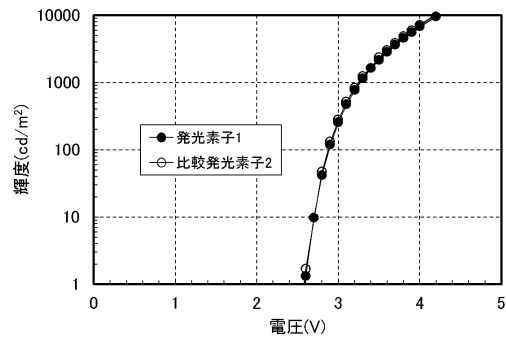
20

30

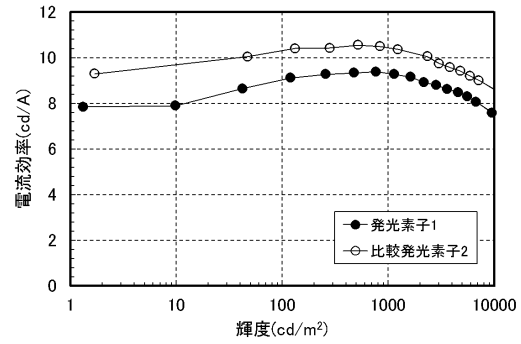
40

50

【図 19】

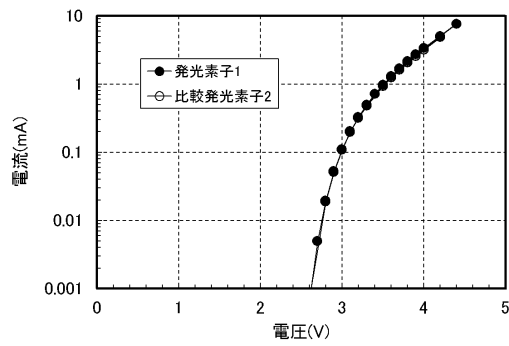


【図 20】

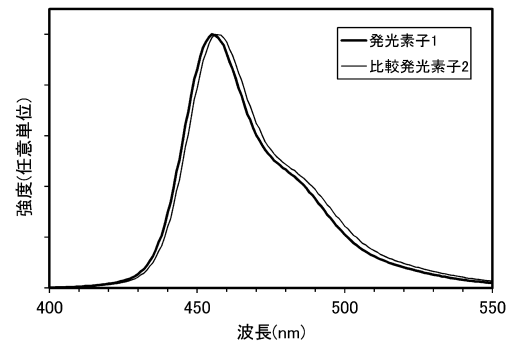


10

【図 21】



【図 22】



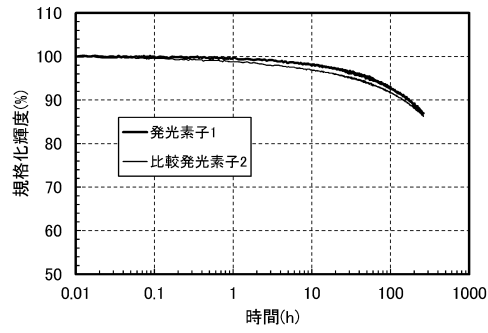
20

30

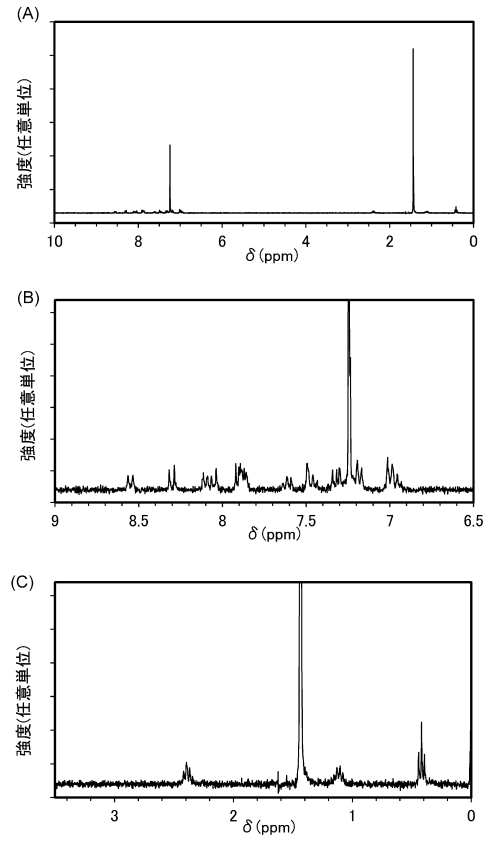
40

50

【図 2 3】



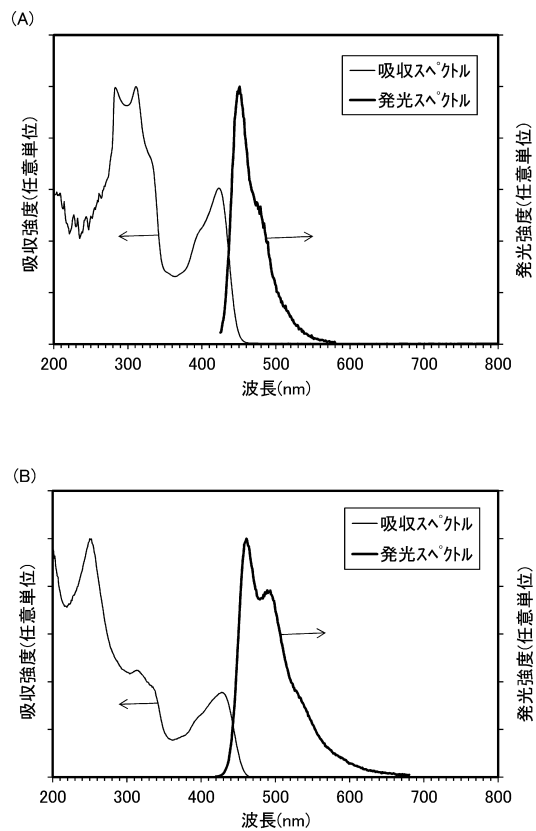
【図 2 4】



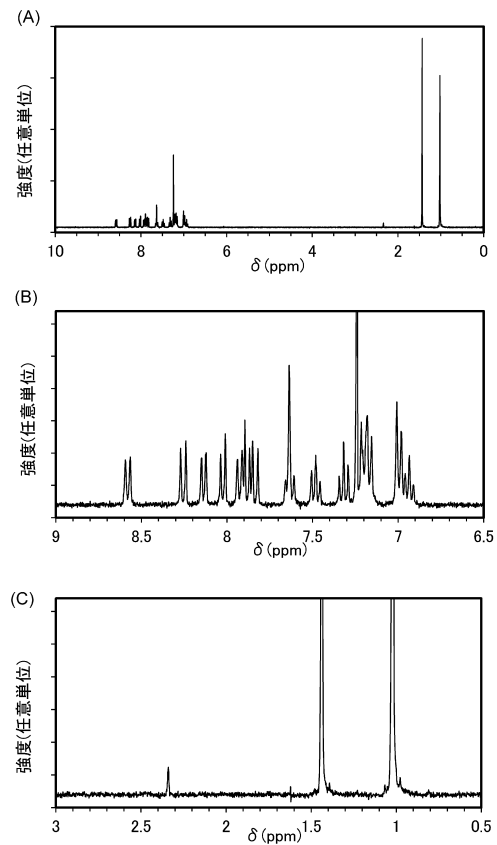
10

20

【図 2 5】



【図 2 6】

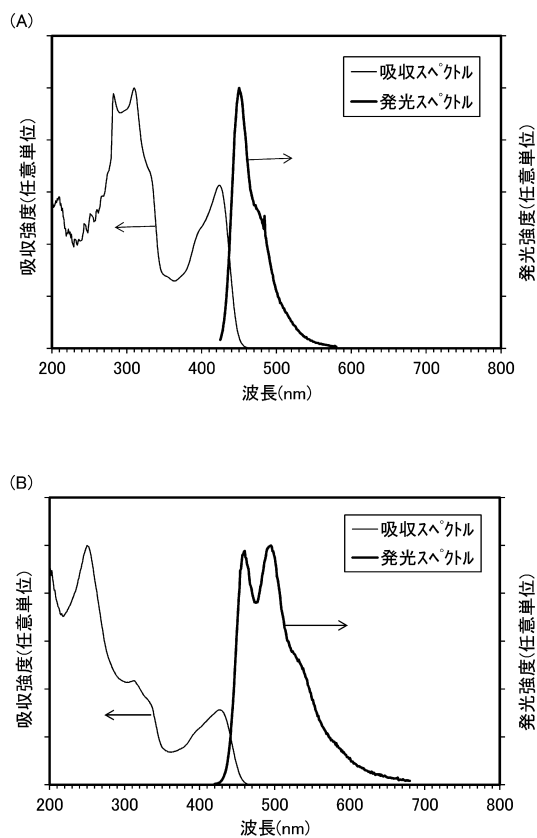


30

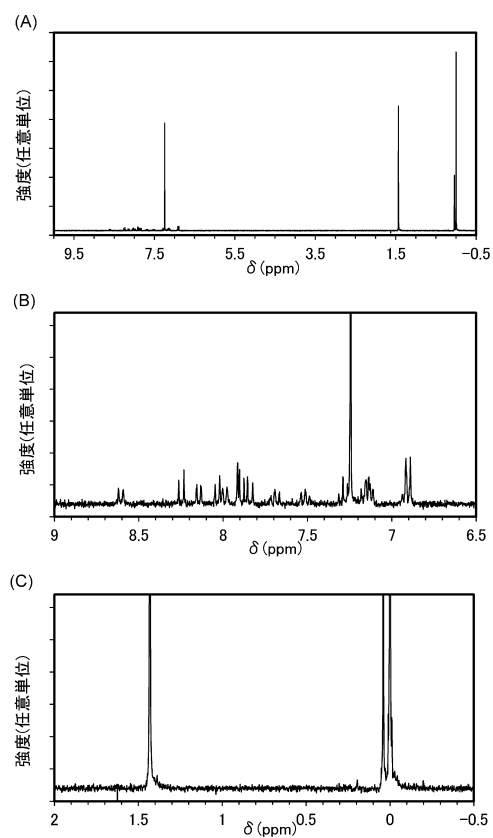
40

50

【図 27】



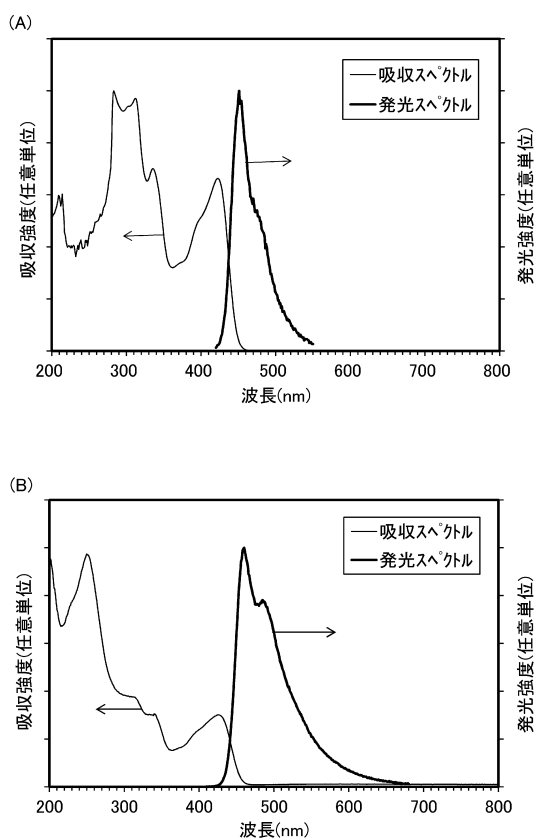
【図 28】



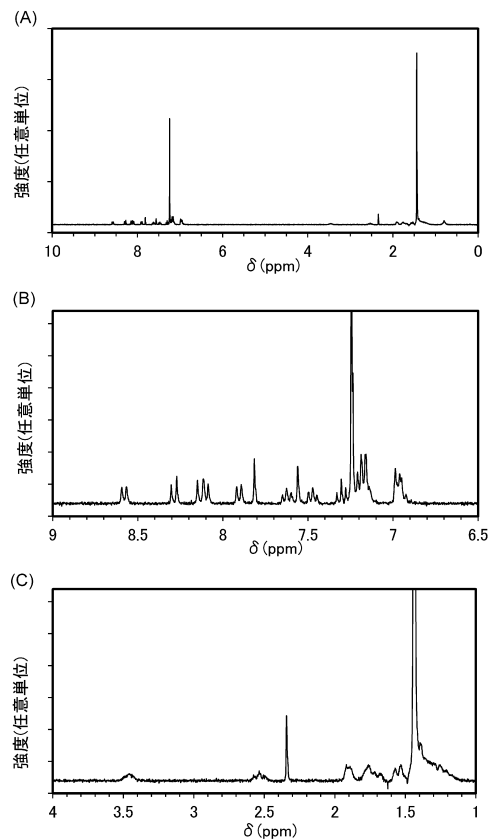
10

20

【図 29】



【図 30】

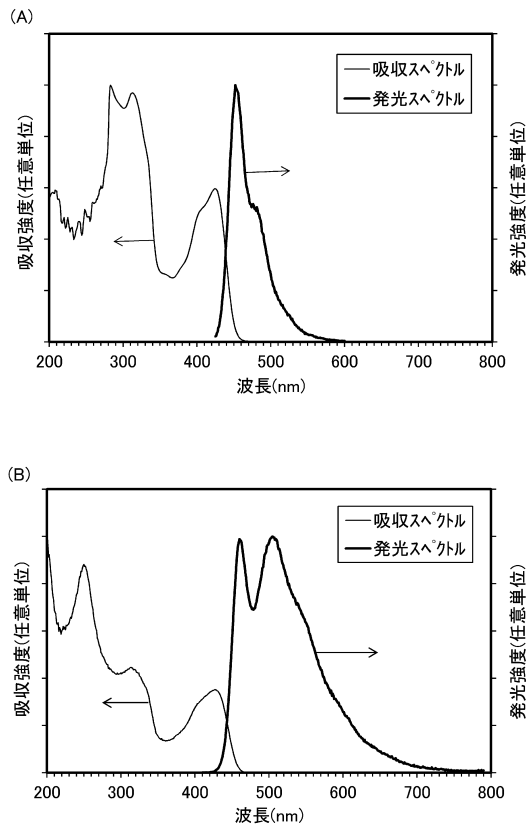


30

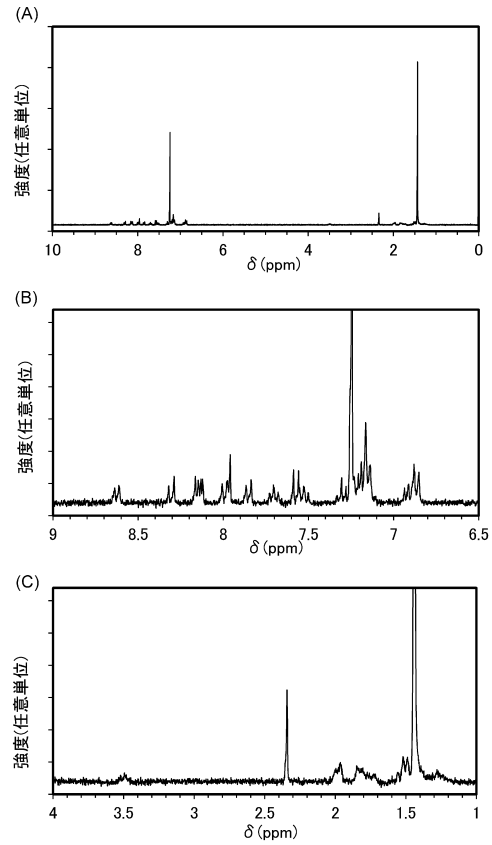
40

50

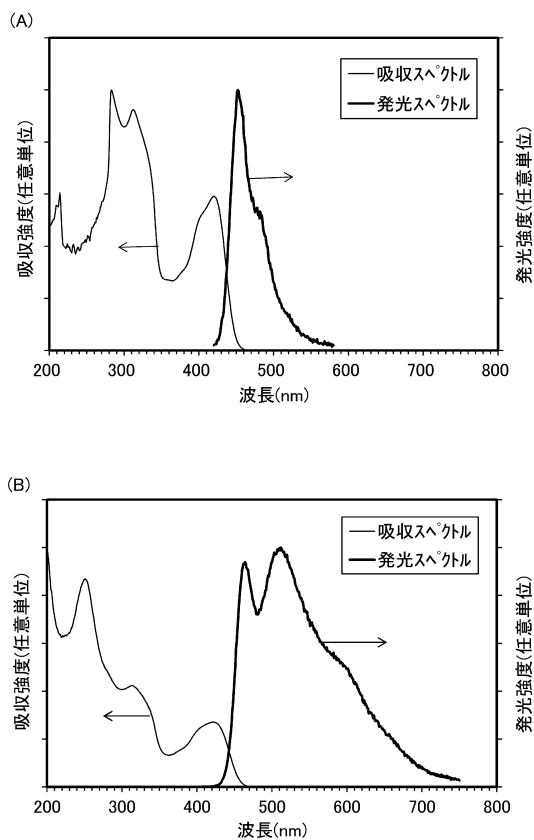
【図 3 1】



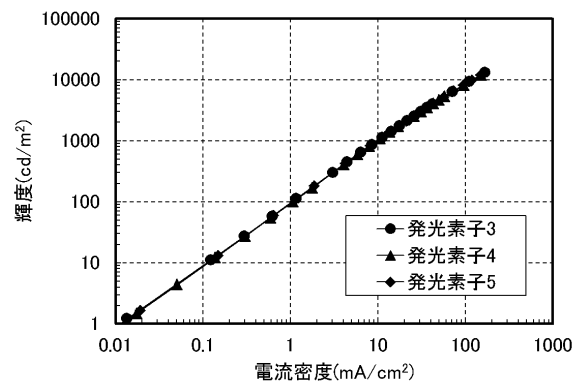
【図 3 2】



【図 3 3】



【図 3 4】



10

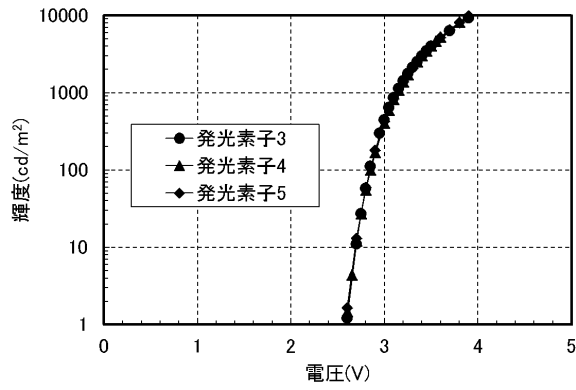
20

30

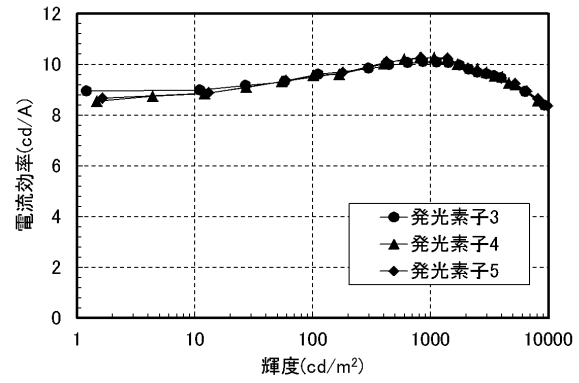
40

50

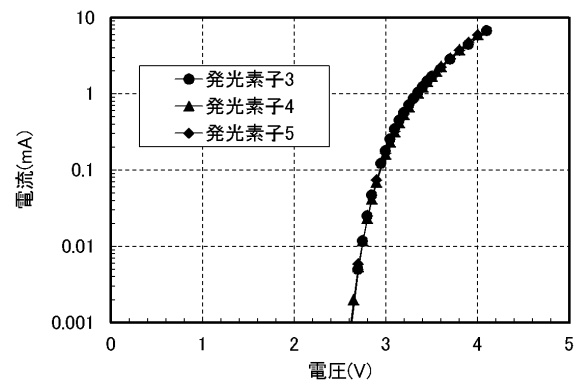
【図 3 5】



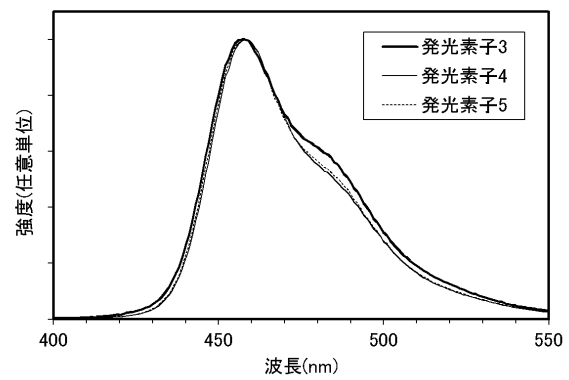
【図 3 6】



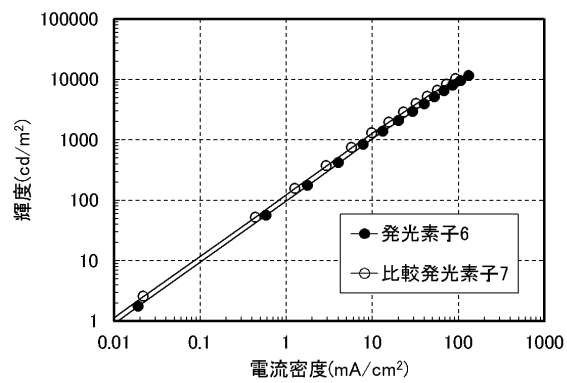
【図 3 7】



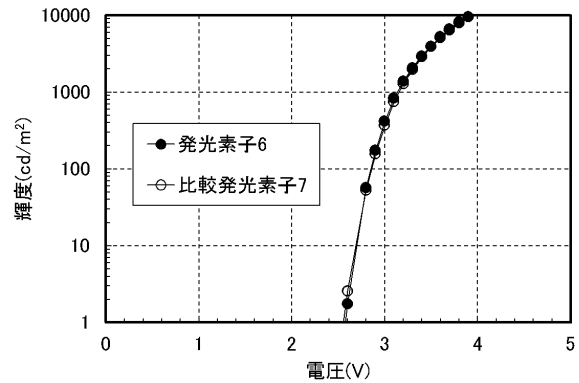
【図 3 8】



【図 3 9】



【図 4 0】



10

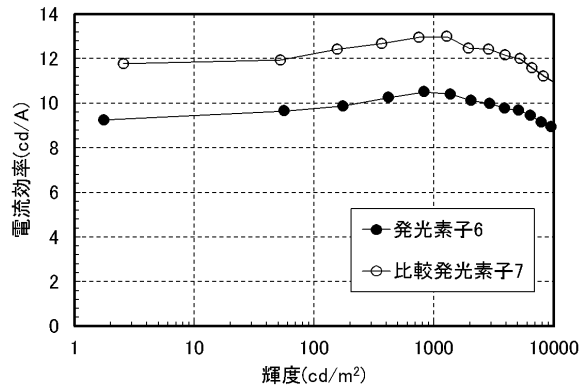
20

30

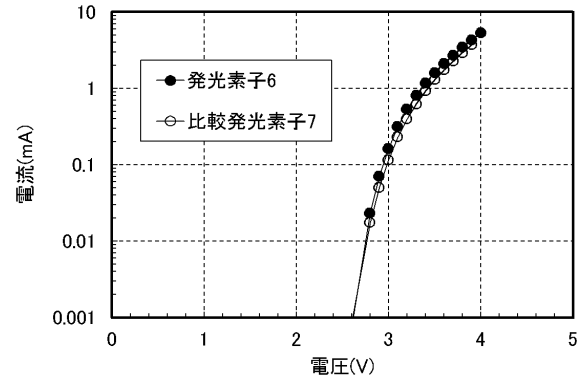
40

50

【図 4 1】

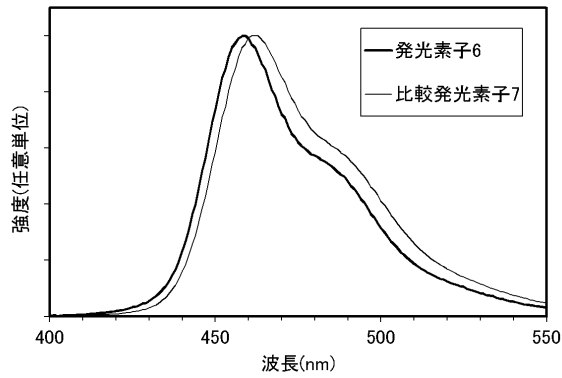


【図 4 2】

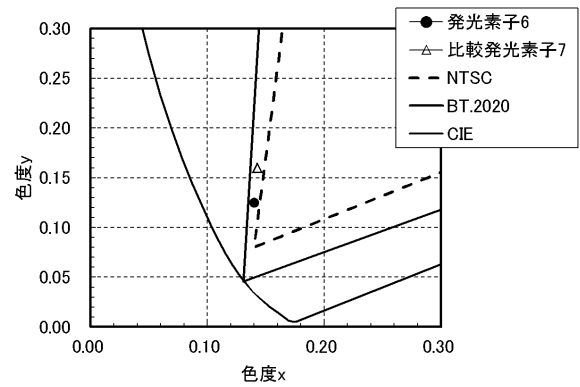


10

【図 4 3】



【図 4 4】



20

30

40

50

フロントページの続き

- (72)発明者 鈴木 恒徳
神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
- (72)発明者 瀬尾 哲史
神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
- 審査官 三上 晶子
- (56)参考文献 特開 2 0 1 5 - 0 4 2 6 3 6 (J P , A)
国際公開第 2 0 1 3 / 0 7 7 4 0 5 (W O , A 1)
国際公開第 2 0 1 3 / 0 4 2 7 7 5 (W O , A 1)
国際公開第 2 0 1 6 / 0 4 2 7 7 2 (W O , A 1)
- (58)調査した分野 (Int.Cl., D B 名)
C 0 7 D 3 0 7 / 7 7
H 0 1 L 5 1 / 5 0
C 0 9 K 1 1 / 0 6
C 0 7 F 7 / 1 0
C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)