(19)国家知识产权局

(12)发明专利

(10)授权公告号 CN 109912518 B
(45)授权公告日 2022.10.14

(21)申请号 201910216048.9
(22)申请日 2014.09.12
(65)同一申请的已公布的文献号
申请公布号 CN 109912518 A
(43)申请公布日 2019.06.21
(30)优先权数据
2013-190214 2013.09.13 JP
2014-097738 2014.05.09 JP
(62)分案原申请数据
201410465377.4 2014.09.12
(73)专利权人 株式会社半导体能源研究所
地址 日本神奈川
(72)发明人 井上英子 久保田朋广 濑尾哲史 山脇隼人 北野靖
(74)专利代理机构 中国贸促会专利商标事务所有限公司 11038
专利代理师 贾成功
(51)Int.Cl.
C07D 241/38(2006.01)
C09K 11/06(2006.01)
H01L 51/54(2006.01)
(56)对比文件
CN 102190653 A,2011.09.21
US 2013060033 A1,2013.03.07
审查员 张静静

权利要求书1页 说明书34页 附图10页

(54)发明名称

二苯并[f,h]喹喔啉的合成方法、二苯并[f,h]喹喔啉衍生物及发光装置

(57)摘要

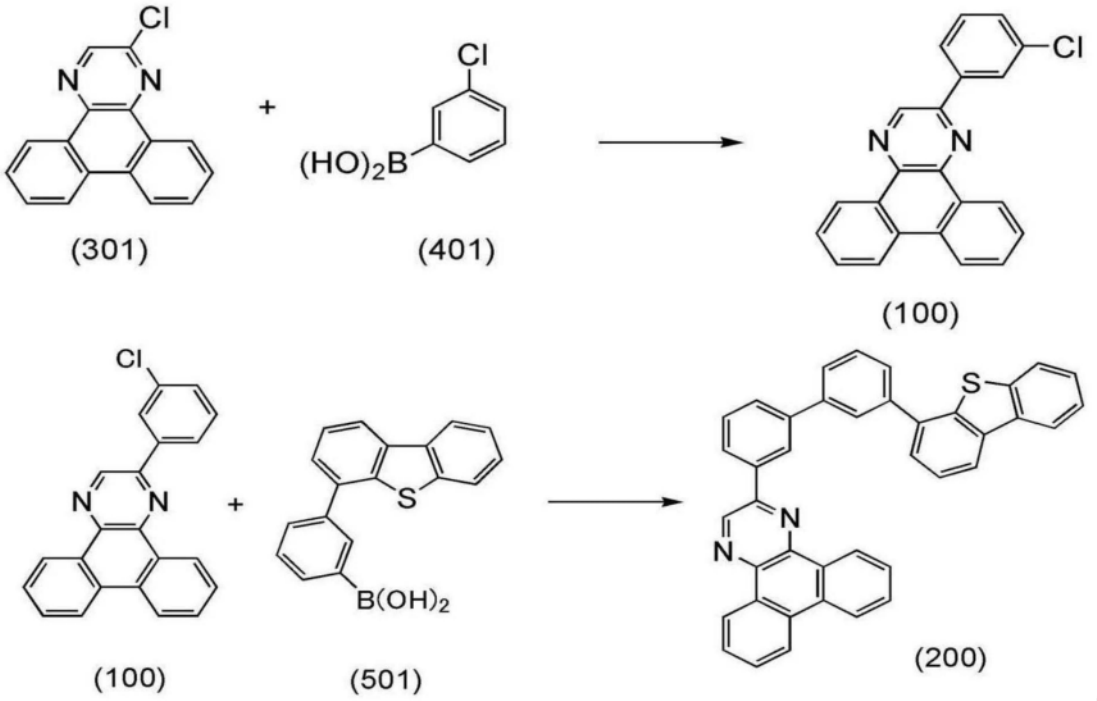
本发明的一个方式提供一种减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物以及合成减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的新颖的合成方法,及使用上述二苯并[f,h]喹喔啉衍生物作为EL材料的发光效率及可靠性高的发光元件、发光装置、电子设备或者照明装置。本发明的一个方式是一种减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物以及其合成方法,其中,通过经由合成中间体2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物,能够容易利用升华纯化去除包含于最终生成物中的杂质,因此能够减少杂质。

CN 109912518 B

1.一种合成方法,其中,

通过使由式(301)所示的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物与由式(401)所示的3-氯苯基硼酸偶联,合成由式(100)所示的2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉,

通过使获得的由式(100)所示的2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉与由式(501)所示的3-(二苯并噻吩-4-基)苯基硼酸偶联,合成由式(200)所示的2-[3'-(二苯并噻吩-4-基)联苯-3-基]二苯并[f,h]喹喔啉,



。

二苯并[f,h]喹喔啉的合成方法、二苯并[f,h]喹喔啉衍生物及发光装置

[0001] 本申请是申请日为“2014年9月12日”、申请号为201410465377.4、发明名称为“二苯并[f,h]喹喔啉衍生物、二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的合成方法、发光元件、发光装置、电子设备以及照明装置”专利申请的分案申请。

技术领域

[0002] 本发明涉及一种物体、方法或制造方法。另外，本发明涉及一种工序(process)、机器(machine)、产品(manufacture)或者组合物(composition of matter)。尤其是，本发明的一个方式涉及一种半导体装置、显示装置、发光装置、它们的驱动方法或制造方法。尤其是，本发明的一个方式涉及一种二苯并[f,h]喹喔啉衍生物以及二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的新颖的合成方法。此外，涉及一种使用了上述二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的发光元件、发光装置、电子设备以及照明装置。

背景技术

[0003] 具有在一对电极之间设置有EL层的结构的发光元件是自发光型元件，其中，通过施加电场，载流子(空穴或电子)从两电极注入，基于在EL层中的载流子的重新结合而带来的能量，获得发光。

[0004] 作为用于发光元件的EL层的EL材料，主要使用有机化合物。因为它有助于发光元件的元件特性的提高，因此已对各种各样的新颖的有机化合物进行开发(例如，参照专利文献1)。

[0005] [专利文献1]日本专利申请公开2011-201869号公报

发明内容

[0006] 在有机化合物的合成中，优选使用简单且廉价的方法，并且，尽量不含不能在技术上去除的物质(杂质)是重要的。例如，就二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的合成而言，已知以单氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物为原料而使用的方法(例如，参照专利文献1)，但是在该合成方法中，容易包含作为杂质的具有多个氯的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。这种杂质难以完全去除，因此有时混在最终生成物中。

[0007] 注意，当制造发光元件时，EL层的形成影响到发光元件的特性，因此EL层的形成是非常重要的，当用于EL层的EL材料包含氯化物等杂质时，有着发光元件的元件特性下降的问题。

[0008] 因此，本发明的一个方式提供一种减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物以及合成减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的新颖的合成方法。本发明的其他的一个方式提供一种使用上述二苯并[f,h]喹喔啉衍生物作为EL材料的发光效率及可靠性高的发光元件、发光装置、电子设备或者照明装置。本发明的其他的一个方式提供一种新颖的材料。本发明的其他的一个方式提供一种新颖的发光元件、发光装置。注意，这些目的的记载不妨

碍其他目的的存在。此外，本发明的一个方式并不需要解决所有上述目的。另外，从说明书、附图、权利要求书等的记载看来这些目的以外的目的是显然易见的，而可以从说明书、附图、权利要求书等的记载中提取出这些目的以外的目的。

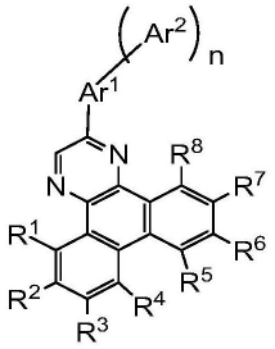
[0009] 本发明的一个方式是一种二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的合成方法以及减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物，其中，通过经由合成中间体2-(氯芳基(chloroaryl))二苯并[f,h]喹喔啉衍生物，能够容易利用升华纯化去除包含于最终生成物中的杂质，因此可以减少杂质。

[0010] 在上述合成方法中，通过使2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物与氯芳基硼酸偶联，来获得合成中间体2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。此时，会包含2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的二苯并[f,h]喹喔啉骨架被多个氯取代的杂质，然而，由于化学反应，二苯并[f,h]喹喔啉骨架的多个氯原子被氯芳基或氢原子取代。因此，通过使经由该反应获得的2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物与芳基硼酸或杂芳基硼酸偶联，可以生成减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物作为最终生成物。本发明的一个方式包括这种合成方法。另外，本发明的一个方式还包括上述合成中间体2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。

[0011] 因此，本发明的一个方式是一种二苯并[f,h]喹喔啉衍生物，其特征在于，芳基键合到二苯并[f,h]喹喔啉骨架的2位，并且，该芳基作为取代基具有至少一个芳基或杂芳基，且氯含量为10ppm以下。

[0012] 本发明的其他的一个方式是一种特征在于以以下通式(G1)表示且氯含量为10ppm以下的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。

[0013]



(G1)

[0014] 在通式(G1)中，Ar^1表示取代或未取代的碳原子数为6至13的亚芳基，且Ar^2表示取代或未取代的碳原子数为6至40的芳基或取代或未取代的碳原子数为6至40的杂芳基。R^1至R^8独立地表示碳原子数为1至6的烷基、苯基、具有碳原子数为1至6的烷基作为取代基的苯基、或R^1至R^8全部表示氢。并且，n为1至3。

[0015] 本发明的其他的一个方式是一种氯含量为10ppm以下的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物，其中，通过使2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物与芳基硼酸或杂芳基硼酸偶联，来获得上述二苯并[f,h]喹喔啉衍生物，并且，通过使2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物与氯芳基硼酸偶联，来获得上述2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。

[0016] 本发明的其他的一个方式是一种二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的合成方法，其中使2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物与芳基硼酸或者杂芳基硼酸偶联来获得上述二苯并[f,h]喹喔啉衍生物，其中，通过使2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物与氯芳基硼酸偶联，来获

得上述2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。

[0017] 本发明的其他的一个方式是包括二苯并[f,h]喹喔啉衍生物中的任一个的发光元件。

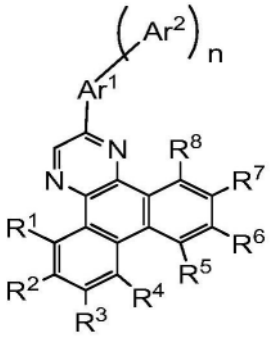
[0018] 本发明的其他的一个方式是包括通过上述合成方法获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的发光元件。

[0019] 本发明的其他的一个方式是一种发光元件，其特征在于，该发光元件在一对电极之间夹持EL层而成，该EL层至少包括发光层，该发光层的主要成分的物质的氯含量为10ppm以下，由此，在电流密度为10mA/cm^{2}的电流下经过200小时之后发光元件保持初始亮度的90％以上。

[0020] 本发明的其他的一个方式是一种发光元件，其特征在于，该发光元件在一对电极之间夹持EL层而成，该EL层至少包括发光层，该发光层的主要成分的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯含量为10ppm以下，由此，在电流密度为10mA/cm^{2}的电流下经过200小时之后发光元件保持初始亮度的90％以上。

[0021] 本发明的其他的一个方式是一种发光元件，其特征在于，该发光元件在一对电极之间夹持EL层而成，该EL层至少包括发光层，该发光层的主要成分的以以下通式(G1)表示的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯含量为10ppm以下，由此，在电流密度为10mA/cm^{2}的电流下经过200小时之后发光元件保持初始亮度的90％以上。

[0022]



(G1)

[0023] 在通式(G1)中，Ar^{1}表示取代或未取代的碳原子数为6至13的亚芳基，且Ar^{2}表示取代或未取代的碳原子数为6至40的芳基或取代或未取代的碳原子数为6至40的杂芳基。R^{1}至R^{8}独立地表示碳原子数为1至6的烷基、苯基、具有碳原子数为1至6的烷基作为取代基的苯基、或R^{1}至R^{8}全部表示氢。并且，n为1至3。

[0024] 本发明的其他的一个方式是包括上述发光元件中的任一个的发光装置。

[0025] 本发明的一个方式在其范畴内不仅包括具有发光元件的发光装置，还包括使用该发光装置的电子设备及照明装置。因此，本说明书中的发光装置是指图像显示装置或光源(包括照明装置)。此外，发光装置还包括如下模块的全部：将连接器诸如FPC(Flexible printed circuit:柔性印刷电路)或TCP(Tape Carrier Package:载带封装)安装到发光装置的模块；将印刷线路板设置于TCP的端部的模块；或者将IC(集成电路)通过COG(Chip On Glass:玻璃覆晶)方式直接安装到发光元件的模块。

[0026] 通过本发明的一个方式，能够提供一种减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物以及其合成方法。通过本发明的一个方式，能够提供一种使用上述二苯并[f,h]喹喔啉衍生

物作为EL材料的发光效率及可靠性高的发光元件、发光装置、电子设备或者照明装置。通过本发明的一个方式，能够提供一种新颖的材料。通过本发明的一个方式，能够提供一种新颖的发光元件、发光装置。注意，这些效果的记载不妨碍其他效果的存在。此外，本发明的一个方式并不需要具有所有上述效果。另外，从说明书、附图、权利要求书等的记载看来这些效果以外的效果是显然易见的，而可以从说明书、附图、权利要求书等的记载中提取出这些效果以外的效果。

附图说明

[0027] 图1示出发光元件的结构；

[0028] 图2说明发光元件的结构；

[0029] 图3说明发光装置；

[0030] 图4说明电子设备；

[0031] 图5说明照明装置；

[0032] 图6为结构式(100)所示的中间体的^{1}H-NMR图；

[0033] 图7为结构式(200)所示的EL材料的^{1}H-NMR图；

[0034] 图8说明发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的结构；

[0035] 图9示出发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的电流密度-亮度特性；

[0036] 图10示出发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的电压-亮度特性；

[0037] 图11示出发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的可靠性；

[0038] 图12为结构式(101)所示的中间体的^{1}H-NMR图；

[0039] 图13示出EL材料的氯含量与发光元件的可靠性之间的关系。

[0040] 附图标记说明

[0041] 101:第一电极;102:EL层;103:第二电极;111:空穴注入层;112:空穴传输层;113:发光层;114:电子传输层;115:电子注入层;201:第一电极;202(1):第1EL层;202(2):第2EL层;202(n-1):第(n-1)EL层;202(n):第(n)EL层;204:第2电极;205:电荷产生层;205(1):第1电荷产生层;205(2):第2电荷产生层;205(n-2):第(n-2)电荷产生层;205(n-1):第(n-1)电荷产生层;301:元件衬底;302:像素部;303:驱动电路部(源极线驱动电路);304a、304b:驱动电路部(栅极线驱动电路);305:密封材料;306:密封衬底;307:布线;308:FPC(柔性印刷电路);309:FET;310:FET;311:开关FET;312:电流控制FET;313:第一电极(阳极);314:绝缘物;315:EL层;316:第2电极(阴极);317:发光元件;318:空间;800:衬底;801:第一电极;802:EL层;803:第二电极;811:空穴注入层;812:空穴传输层;813:发光层;814:电子传输层;815:电子注入层;7100:电视装置;7101:外壳;7103:显示部;7105:支架;7107:显示部;7109:操作键;7110:遥控操作机;7201:主体;7202:外壳;7203:显示部;7204:键盘;7205:外部连接端口;7206:指向装置;7302:外壳;7304:显示面板;7305:表示时间的图标;7306:其他图标;7311:操作按钮;7312:操作按钮;7313:连接端子;7321:腕带;7322:表带扣;7400:移动电话机;7401:外壳;7402:显示部;7403:操作按钮;7404:外部连接部;7405:扬声器;7406:麦克风;7407:照相机;8001:照明装置;8002:照明装置;8003:照明装置;8004:照明装置。

具体实施方式

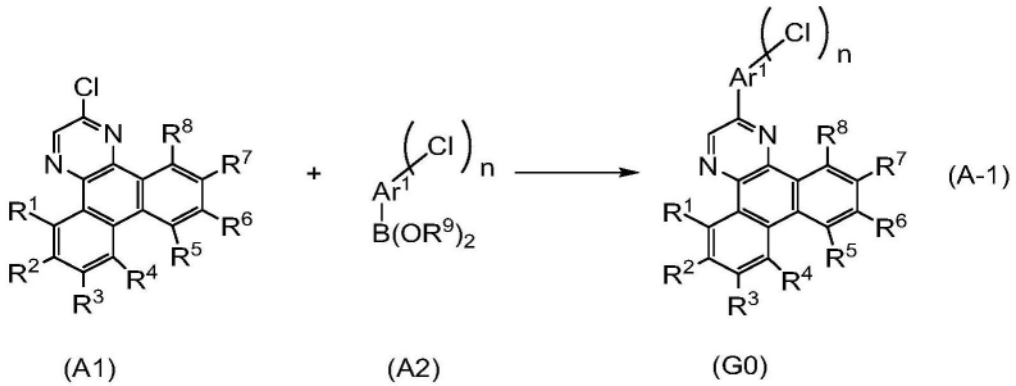
[0042] 下面，参照附图详细地说明本发明的实施方式。注意，本发明不局限于以下说明，其方式及详细内容在不脱离本发明的宗旨及其范围的情况下可以被变换为各种各样的形式。因此，本发明不应该限定在以下所示的实施方式所记载的内容而进行解释。

[0043] 实施方式1

[0044] 在本实施方式中，对本发明的一个方式的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的合成方法进行说明。注意，二苯并[f,h]喹喔啉衍生物包含2-芳基二苯并[f,h]喹喔啉衍生物或2-杂芳基二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。

[0045] 本发明的一个方式是一种合成方法，其特征在于，通过经由合成中间体2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物，能够容易利用升华纯化去除包含于最终生成物中的杂质，因此能够获得减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。

[0046] 例如，以通式(G0)表示的2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物可以通过以下合成方案(A-1)合成。换而言之，如以下合成方案(A-1)所示，通过使2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(A1))与氯芳基硼酸(通式(A2))发生反应，能够获得2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。

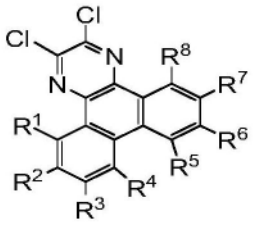
[0047] 

(A1) (A2) (G0)

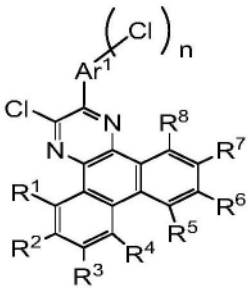
[0048] 在上述合成方案(A-1)中，Ar^1表示取代或未取代的碳原子数为6至13的亚芳基。R^1至R^8独立地表示碳原子数为1至6的烷基、苯基、具有碳原子数为1至6的烷基作为取代基的苯基、或R^1至R^8全部表示氢。并且，n为1至3。R^9表示氢或者烷基。R^9也可以连接而形成环结构。例如，也可使用如频哪醇硼烷基那样的二烷氧基硼烷基。

[0049] 在上述合成方案(A-1)中，原料的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(A1))通常很可能包含作为杂质的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)(例如，以下通式(A1'))。因此，有可能生成2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)(以通式(G0)表示的化合物被多个氯取代的杂质(例如，以下通式(G0'))。但是，本实施方式所示的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的合成方法的特征为：在维持目的物的反应生成收率的同时使脱氯化反应容易发生，脱氯化反应是在有可能存在于反应系统中的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)(以通式(A1)表示的化合物被多个氯取代的杂质(例如，以下通式(A1'))或2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)(以通式(G0)表示的化合物被多个氯取代的杂质(例如，以下通式(G0'))中，氯原子被氢原子取代的反应。因此，可以抑制如以下通式(G0')所示那样的杂质的生成。另外，通过提高以通式(G0)表示的2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的溶解度，减少Ar^1的空间位阻，可以促进上述脱氯化反应。因此，合成方案(A-1)中

的Ar^1优选为取代或未取代的苯基。

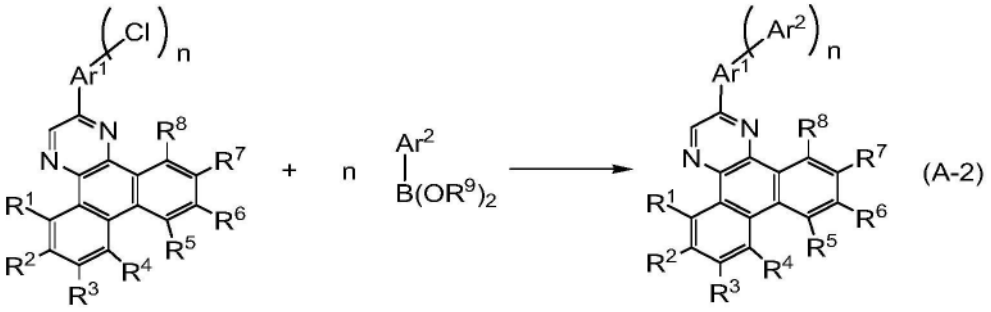
[0050] 

(A1')



(G0')

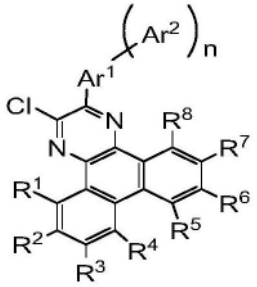
[0051] 接着，如合成方案(A-2)所示，通过使2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G0))与芳基硼酸或者杂芳基硼酸(通式(A3))偶联，合成具有芳基或杂芳基作为取代基的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G1))。

[0052] 

(G0) (A3) (G1) (A-2)

[0053] 在上述合成方案(A-2)中，Ar^1表示取代或未取代的碳原子数为6至13的亚芳基，且Ar^2表示取代或未取代的碳原子数为6至40的芳基或取代或未取代的碳原子数为6至40的杂芳基。R^1至R^8独立地表示碳原子数为1至6的烷基、苯基、具有碳原子数为1至6的烷基作为取代基的苯基、或R^1至R^8全部表示氢。并且，n为1至3。R^9表示氢或者烷基。R^9也可以连接而形成环结构。例如，也可使用如频哪醇硼烷基那样的二烷氧基硼烷基。

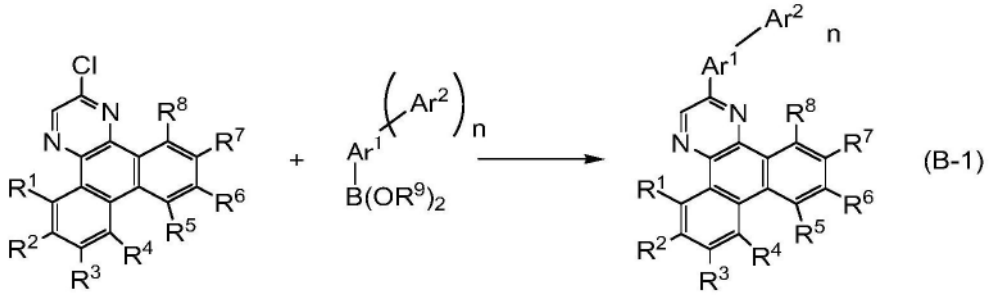
[0054] 如上所述，通过合成方案(A-1)生成的2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G0))极少含有以通式(G0)表示的化合物被多个氯取代的杂质(例如上述通式(G0'))。其结果是，通过合成方案(A-2)合成的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G1))具有不容易产生二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(以下通式(G1'))的特征。这有助于提高发光元件的使用寿命。

[0055] 

(G1')

[0056] 如在实施例中也详细地说明那样，与以下合成方案(B-1)所示的方法合成的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G1))相比，可使使用以合成方案(A-2)合成的二苯并[f,h]喹

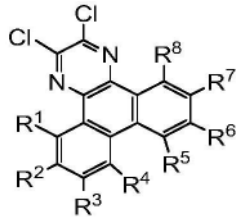
喔啉衍生物(通式(G1))的发光元件长寿命化。

[0057] 

(A1) (B2) (G1)

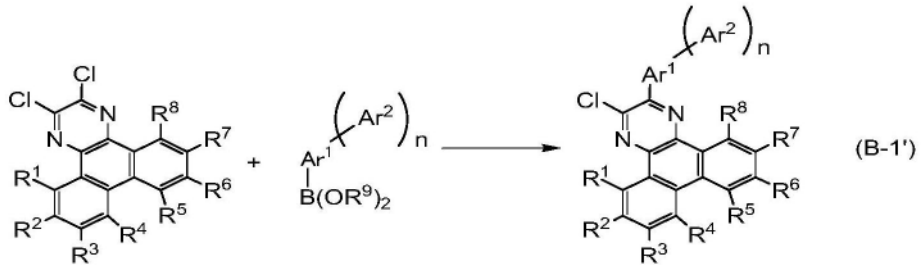
[0058] 在上述合成方案(B-1)中,通过使2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(A1))与具有芳基或杂芳基(Ar^1及Ar^2)作为取代基的硼酸(通式(B2))偶联,来合成二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G1))。在上述合成方案(B-1)中所示的符号依照上述合成方案(A-2)。

[0059] 此时,原料的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(A1))通常很可能包含作为杂质的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)(通式(A1'))),分离纯化也是很难的。

[0060] 

(A1')

[0061] 而且,当使用包含这种2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)(通式(A1'))的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(A1))进行上述合成方案(B-1)所示的反应时,如以下合成方案(B-1')所示,残留不被硼酸(通式(B2))封端的氯,结果会产生二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(通式(G1'))。由此导致对发光元件的可靠性造成严重负面影响。

[0062] 

(A1') (B2) (G1')

[0063] 在上述合成方案(B-1')的反应中,如果能够由硼酸(通式(B2))对2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(通式(A1'))中的所有的氯进行封端,可以抑制二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(通式(G1'))的生成,而可以避免二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(通式(G1'))带来的负面影响。

[0064] 然而,在2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)(通式(A1'))中,在氯键合到彼此相邻的碳(具体而言,吡嗪的2位及3位)的情况下,空间位阻很

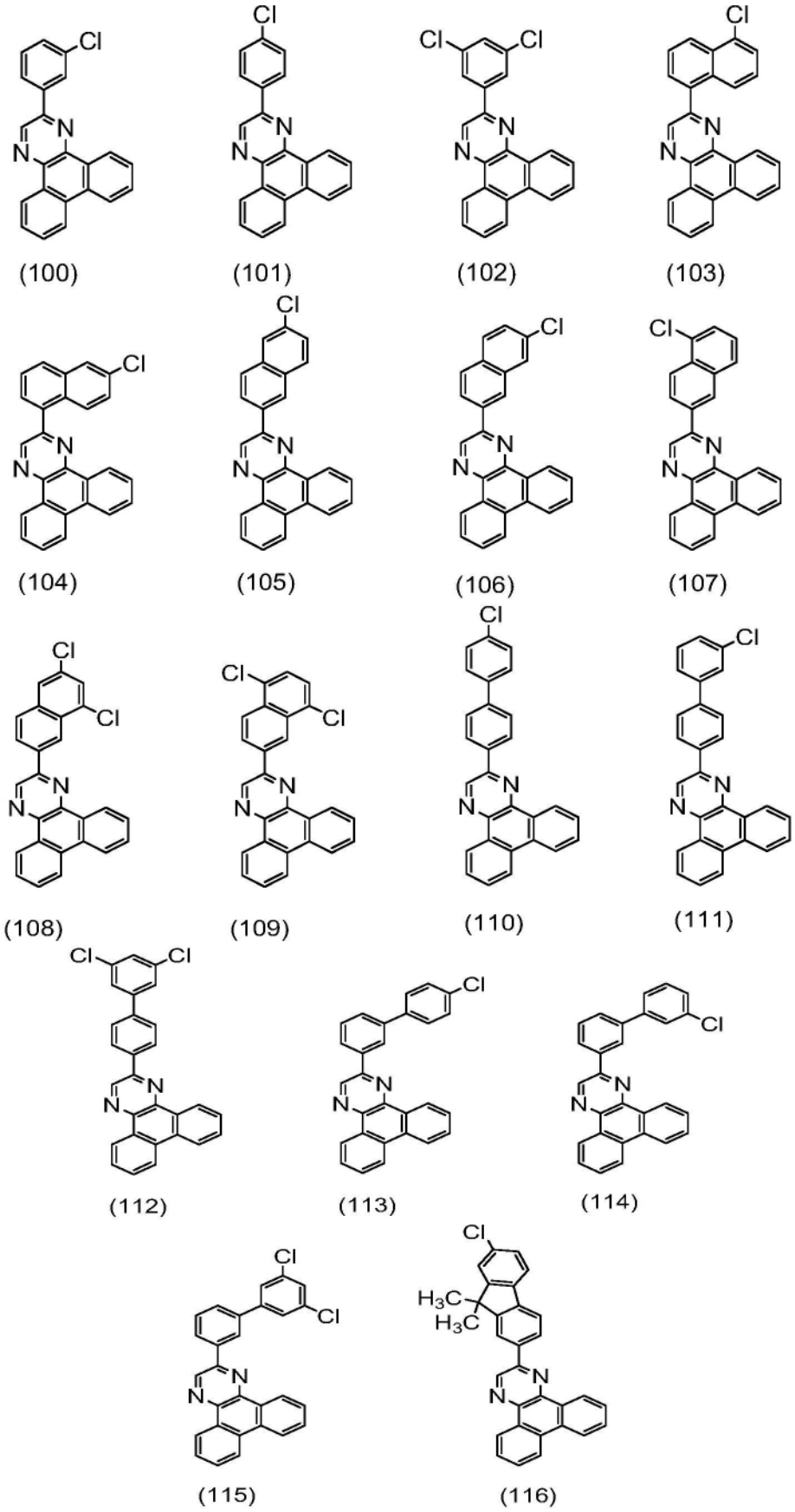
大,所以难以由芳基硼酸(通式(B2))对所有的氯进行封端。换而言之,在存在2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)(通式(A1'))的情况下,难以抑制二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(通式(G1'))的生成。

[0065] 另外,由于二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(通式(G1'))的性质与二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G1))相似,因此一旦生成的话难以分离。尤其是,在R^1及R^2都是苯基且该苯基的邻位互相键合而形成二苯并[f,h]喹喔啉环的情况下,溶解度降低,难以分离。

[0066] 因此,通过使用能够抑制二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(通式(G1'))的生成的本发明的一个方式的合成方法(示于合成方案(A-1)及合成方案(A-2)),可以合成减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物。

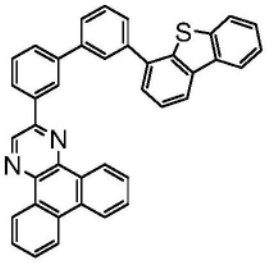
[0067] 2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G0))是有用的新颖的化合物,是本发明的一个方式。关于在合成方案(A-1)中使用的化合物(通式(A1)及通式(A2),各种种类在市场上销售或者能够合成,因此,通过使用这些化合物,可以利用上述合成方法合成各种种类的2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G0))。下面示出以通式(G0)表示的2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的具体结构式(以下结构式(100)至(116))。注意,本发明的一个方式不局限于此。

[0068]

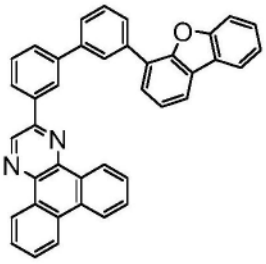


[0069] 以下示出在本发明的一个方式的合成方法中以上述2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G0))为中间体而获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G1))的具体结构

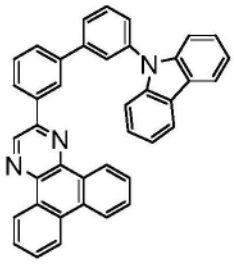
式(以下结构式(200)至(213))。注意,本发明的一个方式不局限于此。



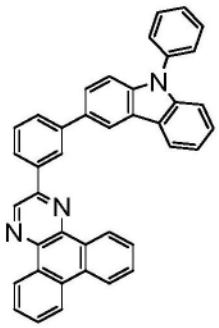
(200)



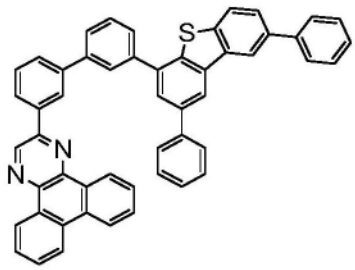
(201)



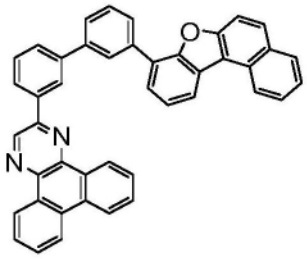
(202)



(203)

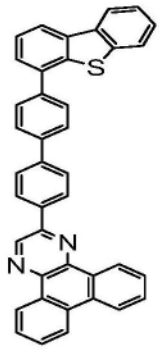


(204)

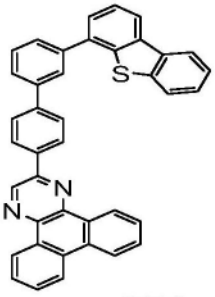


(205)

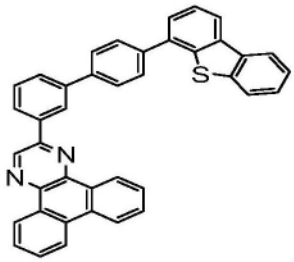
[0070]



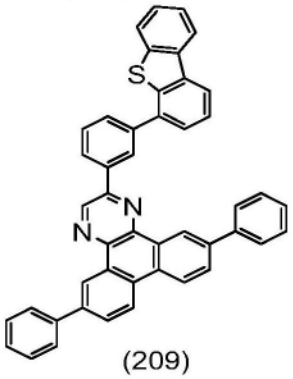
(206)



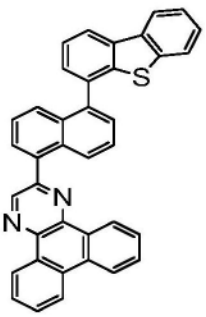
(207)



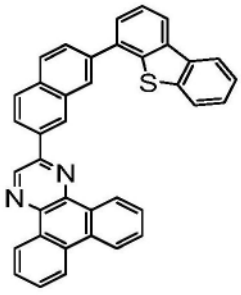
(208)



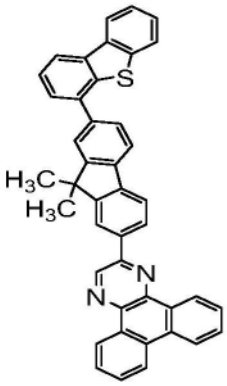
(209)



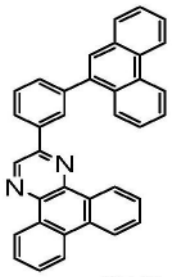
(210)



(211)

[0071] 

(212)



(213)

[0072] 通过本发明的一个方式的合成方法合成的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(G1))的分子量优选为400以上且2000以下。这是因为在分子量低于400的情况下,制造发光元件时的晶化等会降低膜质而对可靠性造成负面影响。而分子量大于2000时,升华纯化、真空蒸镀变得困难。

[0073] 在前面对本发明的一个方式的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的合成方法进行说明。在该合成方法的情况下,由于生成合成中间体2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物,因此可以容易利用升华纯化去除包含于最终生成物中的杂质。

[0074] 即,可以使通过本发明的一个方式的合成方法而获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(即,芳基键合到二苯并[f,h]喹喔啉骨架的2位且该芳基作为取代基具有至少一个芳基或杂芳基的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物)的氯含量为10ppm以下。

[0075] 通过本发明的一个方式的合成方法,可以合成减少了杂质的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物,因此,通过将所得到的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物用于EL材料,可以实现发光效率及可靠性高的发光元件、发光装置、电子设备或照明装置。此外,可以实现电力消耗低的发光元件、发光装置、电子设备或照明装置。

[0076] 本实施方式所示的结构可以与其他实施方式所示的结构适当地组合而使用。

[0077] 实施方式2

[0078] 在本实施方式中,参照图1说明一种发光元件的一个方式,即能够将通过本发明的一个方式的合成方法获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(即,芳基键合到二苯并[f,h]喹喔啉骨架的2位,该芳基作为取代基具有至少一个芳基或杂芳基的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物)用作EL材料的发光元件。

[0079] 如图1所示,在本实施方式所示的发光元件中,在一对电极(第一电极(阳极)101与第二电极(阴极)103)之间夹有包括发光层113的EL层102,该EL层102除了发光层113之外,还包括空穴注入层111、空穴传输层112、电子传输层114、电子注入层115等。

[0080] 通过对这种发光元件施加电压,从第一电极101一侧注入的空穴和从第二电极103一侧注入的电子在发光层113中重新结合以使包含在发光层113中的发光物质成为激发态。而且,当该发光物质从激发态回到基态时发光。

[0081] 通过本发明的一个方式的合成方法合成的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物能够被用于在本实施方式中说明的EL层102中的任一个或多个层,更优选被用于发光层113、空穴传输层112或电子传输层114。即,将上述二苯并[f,h]喹喔啉衍生物用于以下说明的发光元件的

一部分。

[0082] 尤其是，通过将利用本发明的一个方式的合成方法获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物用于发光层，能够使本发明的一个方式的发光层的主要成分的物质的氯含量为10ppm以下，其结果是，能够制造在电流密度为10mA/cm^2的电流下经过200小时之后保持初始亮度的90％以上的发光元件。

[0083] 即本发明的发光元件的一个方式是一种发光元件，其特征在于，该发光元件在一对电极之间夹持EL层而成，所述EL层至少包括发光层，该发光层的主要成分的物质的氯含量为10ppm以下，由此，在电流密度为10mA/cm^2的电流下经过200小时之后发光元件保持初始亮度的90％以上。

[0084] 本发明的一个方式是一种发光元件，其特征在于，该发光元件在一对电极之间夹持EL层而成，所述EL层至少包括发光层，该发光层的主要成分的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(例如，以通式(G1)表示的化合物)的氯含量为10ppm以下，由此，在电流密度为10mA/cm^2的电流下经过200小时之后发光元件保持初始亮度的90％以上。

[0085] 下面，说明制造本实施方式所示的发光元件时的具体例子。

[0086] 作为第一电极(阳极)101及第二电极(阴极)103，可以使用金属、合金、导电化合物及它们的混合物等。具体而言，除了氧化铟-氧化锡(ITO:Indium Tin Oxide)、包含硅或氧化硅的氧化铟-氧化锡、氧化铟-氧化锌(Indium Zinc Oxide)、包含氧化钨及氧化锌的氧化铟、金(Au)、铂(Pt)、镍(Ni)、钨(W)、铬(Cr)、钼(Mo)、铁(Fe)、钴(Co)、铜(Cu)、钯(Pd)、钛(Ti)之外，还可以使用属于元素周期表中第1族或第2族的元素，即锂(Li)、铯(Cs)等碱金属、钙(Ca)、锶(Sr)等碱土金属、镁(Mg)、包含这些金属的合金(MgAg、AlLi)、铕(Eu)、镱(Yb)等稀土金属、包含这些金属的合金、石墨烯等。第一电极(阳极)101及第二电极(阴极)103例如可以通过溅射法、蒸镀法(包括真空蒸镀法)等形成。

[0087] 空穴注入层111为将空穴经由空穴传输性高的空穴传输层112注入发光层113的层，包含空穴传输性高的物质及受主性物质。由于包含空穴传输性高的物质及受主性物质，因此受主性物质将电子从空穴传输性高的物质抽出生成空穴，该空穴经由空穴传输层112注入发光层113。空穴传输层112使用空穴传输性高的物质形成。

[0088] 作为用于空穴注入层111及空穴传输层112的空穴传输性高的物质，例如可以举出4,4’-双[N-(1-萘基)-N-苯基氨基]联苯(简称:NPB或α-NPD)、N,N’-双(3-甲基苯基)-N,N’-二苯基-[1,1’-联苯]-4,4’-二胺(简称:TPD)、4,4’,4”-三(咔唑-9-基)三苯胺(简称:TCTA)、4,4’,4”-三(N,N-二苯基氨基)三苯胺(简称:TDATA)、4,4’,4”-三[N-(3-甲基苯基)-N-苯基氨基]三苯胺(简称:MTDATA)、4,4’-双[N-(螺-9,9’-二芴-2-基)-N-苯基氨基]联苯(简称:BSPB)等芳香胺化合物、3-[N-(9-苯基咔唑-3-基)-N-苯基氨基]-9-苯基咔唑(简称:PCzPCA1)、3,6-双[N-(9-苯基咔唑-3-基)-N-苯基氨基]-9-苯基咔唑(简称:PCzPCA2)、3-[N-(1-萘基)-N-(9-苯基咔唑-3-基)氨基]-9-苯基咔唑(简称:PCzPCN1)等。除上述以外，还可以使用4,4’-二(N-咔唑基)联苯(简称:CBP)、1,3,5-三[4-(N-咔唑基)苯基]苯(简称:TCPB)、9-[4-(10-苯基-9-蒽基)苯基]-9H-咔唑(简称:CzPA)等的咔唑衍生物等。在此所述的物质主要是空穴迁移率为$10^{-6}cm^2$/Vs以上的物质。但是，只要是空穴传输性比电子传输性高的物质，就可以使用上述物质之外的物质。

[0089] 再者，还可以使用聚(N-乙烯基咔唑)(简称:PVK)、聚(4-乙烯基三苯胺)(简称:

PVTPA)、聚[N-(4-{N'-[4-(4-二苯基氨基)苯基]苯基-N'-苯基氨基}苯基)甲基丙烯酰胺](简称:PTPDMA)、聚[N,N'-双(4-丁基苯基)-N,N'-双(苯基)联苯胺](简称:Poly-TPD)等高分子化合物。

[0090] 作为用于空穴注入层111的受主性物质,可以举出过渡金属氧化物、属于元素周期表中第4族至第8族的金属的氧化物。具体地说,氧化钼是特别优选的。

[0091] 发光层113是包含发光物质的层。发光层113既可以仅由发光物质构成,又可以使发光中心物质(客体材料)分散在主体材料中。注意,作为主体材料优选使用三重激发能量高的物质。

[0092] 对可用于发光层113中的发光物质或发光中心物质的材料没有特别的限制,可以使用能够将单重激发能量转换为发光的发光物质或者能够将三重激发能量转换为发光的发光物质。作为这种发光物质及发光中心物质,例如可以举出以下材料。

[0093] 作为能够将单重激发能量转换为发光的发光物质,例如可以举出发射荧光的物质。

[0094] 作为发射荧光的物质,可以举出N,N'-双[4-(9H-咔唑-9-基)苯基]-N,N'-二苯基均二苯代乙烯-4,4'-二胺(简称:YGA2S)、4-(9H-咔唑-9-基)-4'-(10-苯基-9-蒽基)三苯胺(简称:YGAPA)、4-(9H-咔唑-9-基)-4'-(9,10-二苯基-2-蒽基)三苯胺(简称:2YGAPPA)、N,9-二苯基-N-[4-(10-苯基-9-蒽基)苯基]-9H-咔唑-3-胺(简称:PCAPA)、二萘嵌苯、2,5,8,11-四(叔丁基)二萘嵌苯(简称:TBP)、4-(10-苯基-9-蒽基)-4'-(9-苯基-9H-咔唑-3-基)三苯胺(简称:PCBAPA)、N,N"-(2-叔丁基蒽-9,10-二基二-4,1-亚苯基)双[N,N',N'-三苯基-1,4-苯二胺](简称:DPABPA)、N,9-二苯基-N-[4-(9,10-二苯基-2-蒽基)苯基]-9H-咔唑-3-胺(简称:2PCAPPA)、N-[4-(9,10-二苯基-2-蒽基)苯基]-N,N',N'-三苯基-1,4-苯二胺(简称:2DPAPPA)、N,N,N',N',N",N",N"',N"'-八苯基二苯并[g,p]5(chrysene)-2,7,10,15-四胺(简称:DBC1)、香豆素30、N-(9,10-二苯基-2-蒽基)-N,9-二苯基-9H-咔唑-3-胺(简称:2PCAPA)、N-[9,10-双(1,1'-联苯-2-基)-2-蒽基]-N,9-二苯基-9H-咔唑-3-胺(简称:2PCABPhA)、N-(9,10-二苯基-2-蒽基)-N,N',N'-三苯基-1,4-苯二胺(简称:2DPAPA)、N-[9,10-双(1,1'-联苯-2-基)-2-蒽基]-N,N',N'-三苯基-1,4-苯二胺(简称:2DPABPhA)、9,10-双(1,1'-联苯-2-基)-N-[4-(9H-咔唑-9-基)苯基]-N-苯基蒽-2-胺(简称:2YGABPhA)、N,N,9-三苯基蒽-9-胺(简称:DPhAPhA)、香豆素545T、N,N'-二苯基喹吖酮(简称:DPQd)、红荧烯、5,12-双(1,1'-联苯-4-基)-6,11-二苯基并四苯(简称:BPT)、2-(2-{2-[4-(二甲氨基)苯基]乙烯基}-6-甲基-4H-吡喃-4-亚基)丙烷二腈(简称:DCM1)、{2-甲基-6-[2-(2,3,6,7-四氢-1H,5H-苯并[ij]喹嗪-9-基)乙烯基]-4H-吡喃-4-亚基}丙烷二腈(简称:DCM2)、N,N,N',N'-四(4-甲基苯基)并四苯-5,11-二胺(简称:p-mPhTD)、7,14-二苯基-N,N,N',N'-四(4-甲基苯基)苊并[1,2-a]荧蒽-3,10-二胺(简称:p-mPhAFD)、{2-异丙基-6-[2-(1,1,7,7-四甲基-2,3,6,7-四氢-1H,5H-苯并[ij]喹嗪-9-基)乙烯基]-4H-吡喃-4-亚基}丙烷二腈(简称:DCJTI)、{2-叔丁基-6-[2-(1,1,7,7-四甲基-2,3,6,7-四氢-1H,5H-苯并[ij]喹嗪-9-基)乙烯基]-4H-吡喃-4-亚基}丙烷二腈(简称:DCJTB)、2-(2,6-双{2-[4-(二甲氨基)苯基]乙烯基}-4H-吡喃-4-亚基)丙烷二腈(简称:BisDCM)、2-{2,6-双[2-(8-甲氧基-1,1,7,7-四甲基-2,3,6,7-四氢-1H,5H-苯并[ij]喹嗪-9-基)乙烯基]-4H-吡喃-4-亚基}丙烷二腈(简称:BisDCJTM)等。

[0095] 作为将三重激发能量转换为发光的发光物质，例如可以举出发射磷光的物质、呈现热活化延迟荧光的热活化延迟荧光(TADF)材料。TADF材料所呈现的延迟荧光是指其光谱与一般的荧光同样但其寿命非常长的发光。该寿命为10^{-6}秒以上，优选为10^{-3}秒以上。

[0096] 作为发射磷光的物质，可以举出双{2-[3',5'-双(三氟甲基)苯基]吡啶-N,$C^{2'}$}铱(III)吡啶甲酸盐(简称:Ir(CF_3ppy)$_2$(pic))、双[2-(4',6'-二氟苯基)吡啶-N,$C^{2'}$]铱(III)乙酰丙酮化物(简称:FIracac)、三(2-苯基吡啶)铱(III)(简称:Ir(ppy)$_3$)、双(2-苯基吡啶)铱(III)乙酰丙酮化物(简称:Ir(ppy)$_2$(acac))、三(乙酰丙酮)(一菲咯啉)铽(III)(简称:Tb(acac)$_3$(Phen))、双(苯并[h]喹啉)铱(III)乙酰丙酮化物(简称:Ir(bzq)$_2$(acac))、双(2,4-二苯基-1,3-噁唑-N,$C^{2'}$)铱(III)乙酰丙酮化物(简称:Ir(dpo)$_2$(acac))、双{2-[4'-(全氟苯基)苯基]吡啶-N,$C^{2'}$}铱(III)乙酰丙酮化物(简称:Ir(p-PF-ph)$_2$(acac))、双(2-苯基苯并噻唑-N,$C^{2'}$)铱(III)乙酰丙酮化物(简称:Ir(bt)$_2$(acac))、双[2-(2'-苯并[4,5-α]噻吩基)吡啶-N,$C^{3'}$]铱(III)乙酰丙酮化物(简称:Ir(btp)$_2$(acac))、双(1-苯基异喹啉-N,$C^{2'}$)铱(III)乙酰丙酮化物(简称:Ir(piq)$_2$(acac))、(乙酰丙酮)双[2,3-双(4-氟苯基)喹喔啉合(quinoxalinato)]铱(III)(简称:Ir(Fdpq)$_2$(acac))、(乙酰丙酮)双(3,5-二甲基-2-苯基吡嗪)铱(III)(简称:[Ir(mppr-Me)$_2$(acac)])、(乙酰丙酮)双(5-异丙基-3-甲基-2-苯基吡嗪)铱(III)(简称:[Ir(mppr-iPr)$_2$(acac)])、(乙酰丙酮)双(2,3,5-三苯基吡嗪)铱(III)(简称:Ir(tppr)$_2$(acac))、双(2,3,5-三苯基吡嗪)(二新戊酰甲烷)铱(III)(简称:[Ir(tppr)$_2$(dpm)])、(乙酰丙酮)双(6-叔丁基-4-苯基嘧啶)铱(III)(简称:[Ir(tBuppm)$_2$(acac)])、(乙酰丙酮)双(4,6-二苯基嘧啶)铱(III)(简称:[Ir(dppm)$_2$(acac)])、2,3,7,8,12,13,17,18-八乙基-21H,23H-卟啉铂(II)(简称:PtOEP)、三(1,3-二苯基-1,3-丙二酮)(一菲咯啉)铕(III)(简称:Eu(DBM)$_3$(Phen))、三[1-(2-噻吩甲酰基)-3,3,3-三氟丙酮](一菲咯啉)铕(III)(简称:Eu(TTA)$_3$(Phen))等。

[0097] 另外，作为用来使上述将三重激发能量转换为发光的发光物质分散的物质(即主体材料)，例如除了2,3-双(4-二苯基氨基苯基)喹喔啉(简称:TPAQn)、NPB等具有芳基胺骨架的化合物之外，优选CBP、4,4',4"-三(咔唑-9-基)三苯胺(简称:TCTA)等咔唑衍生物、双[2-(2-羟基苯基)吡啶根合]锌(简称:Znpp$_2$)、双[2-(2-羟基苯基)苯并噁唑]锌(简称:Zn(BOX)$_2$)、双(2-甲基-8-羟基喹啉)(4-苯基苯酚)铝(简称:BAlq)、三(8-羟基喹啉)铝(简称:Alq_3)等金属配合物。另外，也可以使用PVK等高分子化合物。

[0098] 另外，作为TADF材料，例如可以举出富勒烯、其衍生物、普鲁黄素等吖啶衍生物、伊红等。此外，可以举出包含镁(Mg)、锌(Zn)、镉(Cd)、锡(Sn)、铂(Pt)、铟(In)或钯(Pd)等的含金属卟啉。作为该含金属卟啉，例如可以举出原卟啉-氟化锡配合物(SnF_2(Proto IX))、中卟啉-氟化锡配合物(SnF_2(Meso IX))、血卟啉-氟化锡配合物(SnF_2(Hemato IX))、粪卟啉四甲基酯-氟化锡配合物(SnF_2(Copro III-4Me))、八乙基卟啉-氟化锡配合物(SnF_2(OEP))、初卟啉-氟化锡配合物(SnF_2(Etio I))、八乙基卟啉-氯化铂配合物($PtCl_2$OEP)等。并且，可以使用2-(联苯-4-基)-4,6-双(12-苯基吲哚并[2,3-a]咔唑-11-基)-1,3,5-三嗪(PIC-TRZ)等具有富π电子型杂芳环及缺π电子型杂芳环的杂环化合物。另外，在富π电子型杂芳环和缺π电子型杂芳环直接结合的物质中，富π电子型杂芳环的施主性和缺π电子型杂芳环的受主性都强，而S_1和T_1的能量差变小，所以是特别优选的。

[0099] 另外，通过使发光层113包含客体材料(上述将单重激发能量或三重激发能量转换

为发光的发光物质)和主体材料,能够从发光层113得到发光效率高的发光。

[0100] 电子传输层114是包含电子传输性高的物质的层。电子传输层114可以使用Alq_3、三(4-甲基-8-羟基喹啉合)铝(简称:$Almq_3$)、双(10-羟基苯并[h]-喹啉合)铍(简称:$BeBq_2$)、BAlq、$Zn(BOX)_2$、双[2-(2-羟基苯基)-苯并噻唑]锌(简称:$Zn(BTZ)_2$)等金属配合物。此外,也可以使用2-(4-联苯基)-5-(4-叔丁基苯基)-1,3,4-噁二唑(简称:PBD)、1,3-双[5-(对叔丁基苯基)-1,3,4-噁二唑-2-基]苯(简称:OXD-7)、3-(4-叔丁基苯基)-4-苯基-5-(4-联苯基)-1,2,4-三唑(简称:TAZ)、3-(4-叔丁基苯基)-4-(4-乙基苯基)-5-(4-联苯基)-1,2,4-三唑(简称:p-EtTAZ)、红菲咯啉(简称:Bphen)、浴铜灵(简称:BCP)、4,4'-双(5-甲基苯并噁唑-2-基)均二苯代乙烯(简称:BzOs)等杂芳族化合物。另外,还可以使用聚(2,5-吡啶二基)(简称:PPy)、聚[(9,9-二己基芴-2,7-二基)-共-(吡啶-3,5-二基)](简称:PF-Py)、聚[(9,9-二辛基芴-2,7-二基)-共-(2,2'-联吡啶-6,6'-二基)](简称:PF-BPy)等高分子化合物。在此所述的物质主要是电子迁移率为$1\times10^{-6}cm^2/Vs$以上的物质。注意,只要是电子传输性比空穴传输性高的物质,就可以将上述物质之外的物质用于电子传输层114。

[0101] 电子传输层114既可以为单层,又可以为由上述物质构成的层的两层以上的叠层。

[0102] 电子注入层115是包含电子注入性高的物质的层。电子注入层115可以使用氟化锂(LiF)、氟化铯(CsF)、氟化钙(CaF_2)、锂氧化物(LiO_x)等碱金属、碱土金属或它们的化合物。此外,可以使用氟化铒(ErF_3)等稀土金属化合物。此外,也可以将电子盐用于电子注入层115。作为该电子盐,例如可以举出对氧化钙-氧化铝以高浓度添加电子的物质等。另外,也可以使用如上所述的构成电子传输层114的物质。

[0103] 另外,也可以将有机化合物与电子给体(供体)混合形成的复合材料用于电子注入层115。这种复合材料因为通过电子给体在有机化合物中产生电子而具有优异的电子注入性和电子传输性。在此情况下,有机化合物优选是在传输所产生的电子方面性能优异的材料,具体而言,例如,可以使用如上所述的构成电子传输层114的物质(金属配合物、杂芳族化合物等)。作为电子给体,只要是对有机化合物呈现电子供给性的物质,即可。具体而言,优选碱金属、碱土金属、稀土金属,可以举出锂、铯、镁、钙、铒、镱等。另外,优选碱金属氧化物、碱土金属氧化物,可以举出锂氧化物、钙氧化物、钡氧化物等。此外,可以使用氧化镁等路易斯碱。另外,也可以使用四硫富瓦烯(简称:TTF)等有机化合物。

[0104] 上述空穴注入层111、空穴传输层112、发光层113、电子传输层114以及电子注入层115分别可以通过蒸镀法(包括真空蒸镀法)、喷墨法、涂敷法等的方法形成。

[0105] 在上述发光元件中,由于在第一电极101和第二电极103之间产生电位差而使电流流过,在EL层102中空穴和电子重新结合而发光。而且,该发光穿过第一电极101和第二电极103中的任一个或两个被提取到外部。因此,第一电极101和第二电极103中的任一个或两个为具有透光性的电极。

[0106] 在本实施方式中示出的发光元件为将通过本发明的一个方式的合成方法获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物用作EL材料的发光元件的一个例子。作为具备上述发光元件的发光装置,除了无源矩阵型发光装置、有源矩阵型发光装置之外,还可以制造具备微腔结构的发光元件的发光装置等,上述发光装置都包括在本发明的一个方式的范畴中。

[0107] 在有源矩阵型发光装置的情况下,对晶体管(FET)的结构没有特别的限制。例如,可以适当地使用交错型FET、反交错型FET。此外,形成在FET衬底上的驱动电路也可以由N型

FET和P型FET形成，也可以仅由N型FET或P型FET中的任一个形成。另外，对用于FET的半导体膜的结晶性也没有特别的限制。例如可以使用非晶半导体膜、结晶半导体膜。作为半导体材料，除了IV族(硅等)半导体、III族(镓等)半导体、化合物半导体(包括氧化物半导体)之外，还可以使用有机半导体等。

[0108] 本实施方式所示的结构可以与其他实施方式所示的结构适当地组合而使用。

[0109] 实施方式3

[0110] 在本实施方式中，说明制造夹着电荷产生层具有多个EL层的结构的发光元件(以下，称为串联型发光元件)的情况，其中，将通过本发明的一个方式的合成方法获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物作为EL材料用于EL层。

[0111] 如图2A所示，本实施方式所示的发光元件是在一对电极(第一电极201与第二电极204)之间具有多个EL层(第一EL层202(1)和第二EL层202(2))的串联型发光元件。

[0112] 在本实施方式中，第一电极201被用作阳极，第二电极204被用作阴极。第一电极201及第二电极204可以采用与实施方式2相同的结构。多个EL层(第一EL层202(1)和第二EL层202(2))可以具有与实施方式2所示的EL层相同的结构，也可以其中任一个层具有与实施方式2所示的EL层相同的结构。换言之，第一EL层202(1)和第二EL层202(2)既可以具有相同结构，又可以具有不同结构，作为其结构，可以应用与实施方式2相同的结构。

[0113] 在多个EL层(第一EL层202(1)和第二EL层202(2))之间设置有电荷产生层205。当对第一电极201和第二电极204施加电压时，电荷产生层205具有将电子注入一个EL层，并将空穴注入另一个EL层的功能。在本实施方式中，当向第一电极201以电位高于第二电极204的方式施加电压时，电子从电荷产生层205被注入第一EL层202(1)，空穴被注入第二EL层202(2)。

[0114] 从光提取效率的观点来看，电荷产生层205优选对可见光具有透光性(具体而言，电荷产生层205的可见光透射率为40％以上)。另外，电荷产生层205即使其电导率小于第一电极201、第二电极204也发挥作用。

[0115] 电荷产生层205既可以为在空穴传输性高的有机化合物中添加有电子受体(受体)的结构，又可以为在电子传输性高的有机化合物中添加有电子给体(供体)的结构。或者，也可以层叠有这两种结构。

[0116] 在采用在空穴传输性高的有机化合物中添加有电子受体的结构的情况下，作为空穴传输性高的有机化合物，例如可以使用NPB、TPD、TDATA、MTDATA、4,4’-双[N-(螺-9,9’-二芴-2-基)-N-苯基氨基]联苯(简称:BSPB)等芳族胺化合物等。在此所述的物质主要是空穴迁移率为$10^{-6}cm^2/Vs$以上的物质。注意，只要是空穴传输性比电子传输性高的有机化合物，就可以使用上述物质之外的物质。

[0117] 作为电子受体，可以举出7,7,8,8-四氰基-2,3,5,6-四氟醌二甲烷(简称:F_4-TCNQ)、氯醌等。此外，还可以举出过渡金属氧化物。另外，可以举出属于元素周期表中第4族至第8族的金属的氧化物。具体而言，优选使用氧化钒、氧化铌、氧化钽、氧化铬、氧化钼、氧化钨、氧化锰和氧化铼，这是因为它们具有高电子接受性。其中，尤其优选使用氧化钼，因为氧化钼在大气中很稳定，吸湿性低，并且容易进行处理。

[0118] 另一方面，在采用在电子传输性高的有机化合物中添加有电子给体的结构的情况下，作为电子传输性高的有机化合物，例如可以使用Alq、$Almq_3$、$BeBq_2$或BAlq等具有喹啉骨

架或苯并喹啉骨架的金属配合物等。除此之外，还可以使用$Zn(BOX)_2$、$Zn(BTZ)_2$等具有噁唑系配体、噻唑系配体的金属配合物等。再者，除了金属配合物之外，还可以使用PBD、OXD-7、TAZ、BPhen、BCP等。在此所述的物质主要是电子迁移率为$10^{-6}cm^2/Vs$以上的物质。另外，只要是电子传输性比空穴传输性高的有机化合物，就可以使用上述物质之外的物质。

[0119] 作为电子给体，可以使用碱金属、碱土金属、稀土金属、属于元素周期表中第2族、第13族的金属及它们的氧化物、碳酸盐。具体而言，优选使用锂(Li)、铯(Cs)、镁(Mg)、钙(Ca)、镱(Yb)、铟(In)、氧化锂、碳酸铯等。此外，也可以将如四硫萘并萘(tetrathianaphthacene)等的有机化合物用作电子给体。

[0120] 通过使用上述材料形成电荷产生层205，可以抑制层叠EL层时的驱动电压的增大。

[0121] 虽然在本实施方式中，对具有两个EL层的发光元件进行了说明，但是，如图2(B)所示那样，本发明可以同样地应用于层叠有n个(注意，n是3以上)EL层(202(1)至202(n))的发光元件。如本实施方式的发光元件那样，当在一对电极之间具有多个EL层时，通过将电荷产生层(205(1)至205(n-1))分别设置在EL层和EL层之间，可以在保持低电流密度的状态下实现高亮度区域的发光。由于可以保持低电流密度，因此能够实现使用寿命长的元件。另外，在应用于照明的情况下，因为可以减少由电极材料的电阻导致的电压下降，所以可以实现大面积的均匀发光。另外，还可以实现能够进行低电压驱动且电力消耗低的发光装置。

[0122] 此外，通过使各EL层的发光色不同，作为发光元件整体可得到所需颜色的发光。例如，在具有两个EL层的发光元件中，通过使第一EL层的发光颜色和第二EL层的发光颜色处于补色关系，还能够得到作为发光元件整体进行白色发光的发光元件。补色是指当混合时成为无彩色的颜色关系。也就是说，通过将从发光物质获得的光与为补色关系的光混合，可以得到白色发光。

[0123] 另外，具有三个EL层的发光元件的情况也与此相同，例如，当第一EL层的发光颜色是红色，第二EL层的发光颜色是绿色，第三EL层的发光颜色是蓝色时，发光元件作为整体可以得到白色发光。

[0124] 本实施方式所示的结构可以与其他实施方式所示的结构适当地组合而使用。

[0125] 实施方式4

[0126] 在本实施方式中，说明具有将通过本发明的一个方式的合成方法获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物作为EL材料用于发光层的发光元件的发光装置。

[0127] 上述发光装置既可以是无源矩阵型发光装置，又可以是有源矩阵型发光装置。此外，可以将其他实施方式所说明的发光元件应用于本实施方式所示的发光装置。

[0128] 在本实施方式中，参照图3说明有源矩阵型发光装置。

[0129] 图3(A)是显示发光装置的俯视图，图3(B)是沿图3(A)中的虚线A-A'切割的截面图。本实施方式的有源矩阵型发光装置具有设置在元件衬底301上的像素部302、驱动电路部(源极线驱动电路)303以及驱动电路部(栅极线驱动电路)304a及304b。将像素部302、驱动电路部303以及驱动电路部304a及304b由密封材料305密封在元件衬底301与密封衬底306之间。

[0130] 在元件衬底301上设置引导布线307，该引导布线307用来连接对驱动电路部303及驱动电路部304a、304b传达来自外部的信号(例如，视频信号、时钟信号、起始信号或复位信号等)、电位的外部输入端子。在此，示出作为外部输入端子设置FPC(柔性印刷电路)308的

例子。虽然在此只图示FPC，但是该FPC也可以安装有印刷线路板(PWB)。本说明书中的发光装置不仅包括发光装置主体，而且还包括安装有FPC或PWB的发光装置。

[0131] 接着，参照图3(B)说明截面结构。在元件衬底301上形成有驱动电路部及像素部，在此示出作为源极线驱动电路的驱动电路部303及像素部302。

[0132] 在此示出驱动电路部303具有组合FET309和FET310的结构。驱动电路部303既可以由包含单极性(仅N型或P型中的任一方)晶体管的电路形成，又可以由包含N型晶体管及P型晶体管的CMOS电路形成。在本实施方式中，虽然示出将驱动电路形成在衬底上的驱动器一体型，但是不一定必须如此，也可以将驱动电路形成在衬底的外部而不形成在衬底上。

[0133] 此外，像素部302由包括开关FET311、电流控制FET312及与电流控制FET312的布线(源电极或漏电极)电连接的第一电极(阳极)313的多个像素形成。此外，虽然在本实施方式中示出由开关FET311、电流控制FET312的两个FET构成像素部302的例子，但不局限于此。例如，也可以形成组合三个以上的FET及电容元件的像素部302。

[0134] 作为FET309、310、311、312，例如可以使用交错型晶体管、反交错型晶体管。作为可以用于FET309、310、311、312的半导体材料，例如可以使用IV族(硅等)半导体、III族半导体、化合物半导体、氧化物半导体、有机半导体。此外，对该半导体材料的结晶性也没有特别的限制，例如可以使用非晶半导体或结晶半导体。尤其是，FET309、310、311、312优选使用氧化物半导体。作为该氧化物半导体，例如可以举出In-Ga氧化物、In-M-Zn氧化物(M为Al、Ga、Y、Zr、La、Ce或Nd)等。作为FET309、310、311、312，例如使用能隙为2eV以上，优选为2.5eV以上，更优选为3eV以上的氧化物半导体，由此可以降低晶体管的断态电流(off-state current)。

[0135] 另外，覆盖第一电极313的端部地形成有绝缘物314。在此，使用正型感光性丙烯酸树脂形成绝缘物314。此外，在本实施方式中，将第一电极313用作阳极。

[0136] 优选将绝缘物314的上端部或下端部形成为具有曲率的曲面。通过绝缘物314形成为上述形状，可以使形成在绝缘物314上的膜的覆盖性为良好。例如，作为绝缘物314的材料，可以使用负型感光性树脂或正型感光性树脂中的任一，不局限于有机化合物，而还可以使用无机化合物诸如氧化硅、氧氮化硅、氮化硅等。

[0137] 在第一电极(阳极)313上层叠形成有EL层315及第二电极(阴极)316。在EL层315中至少设置有发光层。另外，在EL层315中，除了发光层之外，还可以适当地设置空穴注入层、空穴传输层、电子传输层、电子注入层、电荷产生层等。

[0138] 另外，由第一电极(阳极)313、EL层315及第二电极(阴极)316的叠层结构形成发光元件317。作为用于第一电极(阳极)313、EL层315及第二电极(阴极)316的材料，可以使用实施方式2所示的材料。此外，虽然在此未图示，但是第二电极(阴极)316与外部输入端子的FPC308电连接。

[0139] 虽然在图3(B)所示的截面图中仅示出一个发光元件317，但是，在像素部302中多个发光元件被配置为矩阵状。通过在像素部302中分别选择性地形成能够得到三种(R、G、B)发光的发光元件，来可以形成能够进行全彩色显示的发光装置。此外，除了可以得到三种(R、G、B)发光的发光元件以外，例如也可以形成能够得到白色(W)、黄色(Y)、品红色(M)、青色(C)等的发光的发光元件。例如，通过对能够得到三种(R、G、B)发光的发光元件追加能够得到上述多种发光的发光元件，可以获得色纯度的提高、电力消耗的降低等的效果。此外，

也可以通过与滤色器组合来实现能够进行全彩色显示的发光装置。

[0140] 再者，通过使用密封材料305将密封衬底306与元件衬底301贴合在一起，成为在由元件衬底301、密封衬底306和密封材料305围绕的空间318中具备发光元件317的结构。此外，空间318可以填充有惰性气体(氮气、氩气等)，也可以填充有密封材料305。

[0141] 优选将环氧类树脂、玻璃粉用作密封材料305。此外，这些材料优选是尽量不使水分、氧透过的材料。此外，作为密封衬底306，除了玻璃衬底、石英衬底之外，还可以使用由FRP(Fiber-Reinforced Plastics:纤维增强的塑料)、PVF(polyvinyl fluoride:聚氟乙烯)、聚酯或丙烯酸树脂等构成的塑料衬底。从粘合性的观点来看，在作为密封剂使用玻璃粉的情况下，作为元件衬底301及密封衬底306优选使用玻璃衬底。

[0142] 如上所述，可以得到有源矩阵型发光装置。

[0143] 本实施方式所示的结构可以与其他实施方式所示的结构适当地组合而使用。

[0144] 实施方式5

[0145] 在本实施方式中，参照图4对应用将通过本发明的一个方式的合成方法获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物用作EL材料的发光装置而完成的各种电子设备的例子进行说明。

[0146] 作为应用发光装置的电子设备，例如可以举出电视装置(也称为电视或电视接收机)、用于计算机等的显示器、数码相机、数码摄像机、数码相框、移动电话机(也称为移动电话、移动电话装置)、便携式游戏机、便携式信息终端、音频再现装置、弹珠机等的大型游戏机等。图4示出这些电子设备的具体例子。

[0147] 图4(A)示出电视装置的一个例子。在电视装置7100中，外壳7101中组装有显示部7103。由显示部7103能够显示影像，并可以将发光装置用于显示部7103。在此示出利用支架7105支撑外壳7101的结构。

[0148] 通过利用外壳7101所具备的操作开关、另外提供的遥控操作机7110可以进行电视装置7100的操作。通过利用遥控操作机7110所具备的操作键7109，可以进行频道、音量的操作，并可以对在显示部7103上显示的图像进行操作。此外，也可以采用在遥控操作机7110中设置显示从该遥控操作机7110输出的信息的显示部7107的结构。

[0149] 电视装置7100采用具备接收机、调制解调器等的结构。通过接收机可以接收一般的电视广播。再者，通过调制解调器连接到有线或无线方式的通信网络，可以进行单向(从发送者到接收者)或双向(发送者和接收者之间或接收者彼此之间等)的信息通信。

[0150] 图4(B)为计算机，该计算机包括主体7201、外壳7202、显示部7203、键盘7204、外部连接端口7205、指向装置7206等。该计算机可以通过将发光装置用于其显示部7203来制造。

[0151] 图4(C)是智能手表，该智能手表包括外壳7302、显示面板7304、操作按钮7311、操作按钮7312、连接端子7313、腕带7321、表带扣7322等。

[0152] 安装在兼用作框架(bezel)部分的外壳7302中的显示面板7304具有非矩形状的显示区域。显示面板7304可以显示表示时间的图标7305以及其他图标7306等。

[0153] 在图4C所示的智能手表可以具有各种功能。例如，可以具有在显示部分上显示多种信息(静态图像、运动图像、文字图像等)的功能，触摸屏功能，显示日历、日期或时间等的功能，以多种软件(程序)控制处理的功能，无线通信功能，使用无线通信功能与多种计算机网络连接的功能，使用无线通信功能发送及接收多种数据的功能，以及读取储存于存储介质内的程序或数据并且将该程序或数据显示于显示部分上的功能等。

[0154] 外壳7302的内部可具有扬声器、传感器(包括测定如下因素的功能:力量、位移、位置、速度、加速度、角速度、转速、距离、光、液、磁、温度、化学物质、声音、时间、硬度、电场、电流、电压、电力、辐射线、流量、湿度、斜率、振动、气味或红外线)、麦克风等。另外,智能手表可以通过将发光装置用于其显示面板7304来制造。

[0155] 图4(D)示出移动电话机的一个例子。移动电话机7400在外壳7401中具备显示部7402、麦克风7406、扬声器7405、照相机7407、外部连接部7404、操作按钮7403等。当将本发明的一个方式的发光元件形成在具有柔性的衬底时,可以应用于如图4(D)所示那样的具有曲面的显示部7402。

[0156] 图4(D)所示的移动电话机7400可以用手指等触摸显示部7402来输入信息。此外,可以用手指等触摸显示部7402来进行打电话或制作电子邮件等的操作。

[0157] 显示部7402的屏幕主要有如下三种模式:第一是以图像显示为主的显示模式;第二是以文字等信息输入为主的输入模式;第三是混合显示模式与输入模式的两种模式的显示及输入模式。

[0158] 例如,在打电话或制作电子邮件的情况下,将显示部7402设定为以文字输入为主的文字输入模式,并进行显示在屏幕的文字的输入操作,即可。在此情况下,优选的是,在显示部7402的屏幕的大部分上显示键盘或号码按钮。

[0159] 另外,通过在移动电话机7400内部设置具有陀螺仪、加速度传感器等检测倾斜度的传感器的检测装置,判断移动电话机7400的方向(纵向或横向),可以对显示部7402的屏幕显示进行自动切换。

[0160] 此外,通过触摸显示部7402或对外壳7401的按钮7403进行操作,切换屏幕模式。也可以根据显示在显示部7402上的图像种类切换屏幕模式。例如,当显示在显示部上的图像信号为动态图像的数据时,将屏幕模式切换成显示模式,而当显示在显示部上的图像信号为文字数据时,将屏幕模式切换成输入模式。

[0161] 在输入模式下检测显示部7402的光传感器所检测的信号,在一定期间内没有显示部7402的触摸操作输入时,也可以控制为将屏面模式从输入模式切换成显示模式。

[0162] 显示部7402还可以作为图像传感器而起作用。例如,通过用手掌、手指触摸显示部7402,来拍摄掌纹、指纹等,可以进行身份识别。此外,通过在显示部中使用发射近红外光的背光灯或发射近红外光的感测光源,也可以拍摄手指静脉、手掌静脉等。

[0163] 如上所述,可以应用包括以本发明的一个方式的制造方法制造的发光元件的发光装置而得到电子设备。能够应用的电子设备不局限于在本实施方式中所示的电子设备,可以应用于各种领域的电子设备。

[0164] 本实施方式所示的结构可以与其他实施方式所示的结构适当地组合而使用。

[0165] 实施方式6

[0166] 在本实施方式中,参照图5说明应用包含通过本发明的一个方式的合成方法获得的二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的发光装置的照明装置的一个例子。

[0167] 图5为将发光装置用作室内照明装置8001的例子。因为发光装置可以实现大面积化,所以也可以形成大面积的照明装置。此外,也可以通过使用具有曲面的外壳来形成发光区域具有曲面的照明装置8002。包括在本实施方式所示的发光装置中的发光元件为薄膜状,外壳的设计的自由度高。因此,可以形成凝聚各种设计的照明装置。再者,也可以在室内

的墙面具备大型的照明装置8003。

[0168] 另外，通过将发光装置用于桌子的表面，可以形成具有桌子的功能的照明装置8004。此外，通过将发光装置用于其他家具的一部分，可以形成具有家具的功能的照明装置。

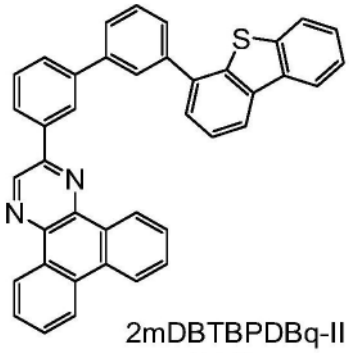
[0169] 如上所述，可以得到应用发光装置的各种各样的照明装置。这些照明装置都包括在本发明的一个方式的范畴中。

[0170] 本实施方式所示的结构可以与其他实施方式所示的结构适当地组合而使用。

[0171] 实施例1

[0172] 《合成实例1》

[0173] 在本实施例中，作为本发明的一个方式的合成方法，说明2-[3'-(二苯并噻吩-4-基)联苯-3-基]二苯并[f,h]喹喔啉(简称：2mDBTBPDBq-II)(结构式(200))的合成方法。以下示出2mDBTBPDBq-II的结构。

[0174] 

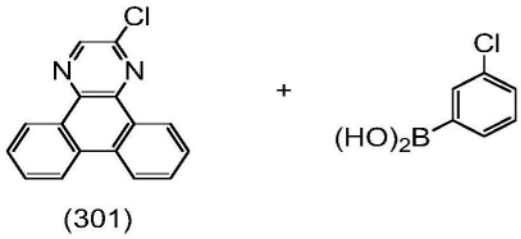
2mDBTBPDBq-II
(200)

[0175] <步骤1:2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉的合成>

[0176] 首先，将2-氯二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(301))19.9g(75mmol)、3-氯苯基硼酸12.9g(82.5mmol)、碳酸钾31.1g(225mmol)、甲苯380mL、乙醇100mL以及水115mL放入1L三口烧瓶，用氮气置换烧瓶内。对该混合物在减压下进行搅拌来进行脱气。

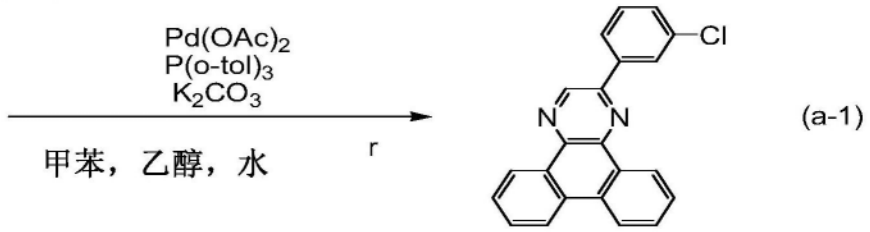
[0177] 接着，对该混合物添加醋酸钯(II)(简称：$Pd(OAc)_2$)0.51g(2.25mmol)、三(2-甲基苯基)膦1.53g(4.5mmol)。对该混合物在氮气流下且在大约80℃的温度下搅拌6小时。反应之后，利用抽滤将析出的灰色固体过滤分离出来，接着依次用乙醇、水、乙醇对该固体进行洗涤。对所得到的固体在减压下且在70℃的温度下进行干燥，以95％的收率获得目的物24.3g。

[0178] (a-1)示出步骤1的合成方案。



(301)

[0179]



(a-1)

(100)

[0180] 以下示出通过上述步骤1获得的灰色固体的核磁共振分光法(^{1}H-NMR)的分析结果。图6(A)和图6(B)示出^{1}H-NMR图。图6(B)为图6(A)中的横轴(δ)的6.5(ppm)至10(ppm)的范围的放大图。由此可知，上述步骤1中获得2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(100))。

[0181] ^{1}H NMR($CDCl_3$,500MHz):δ(ppm)＝7.50-7.57(m,2H),7.74-7.85(m,4H),8.20(td,J＝7.5Hz,1.5Hz,1H),8.38(t,J＝2.0Hz,1H),8.66(d,J＝8.0Hz,2H),9.23(dd,J＝8.0Hz,2.0Hz,1H),9.36(s,1H),9.40(dd,J＝8.5Hz,2.0Hz,1H)。

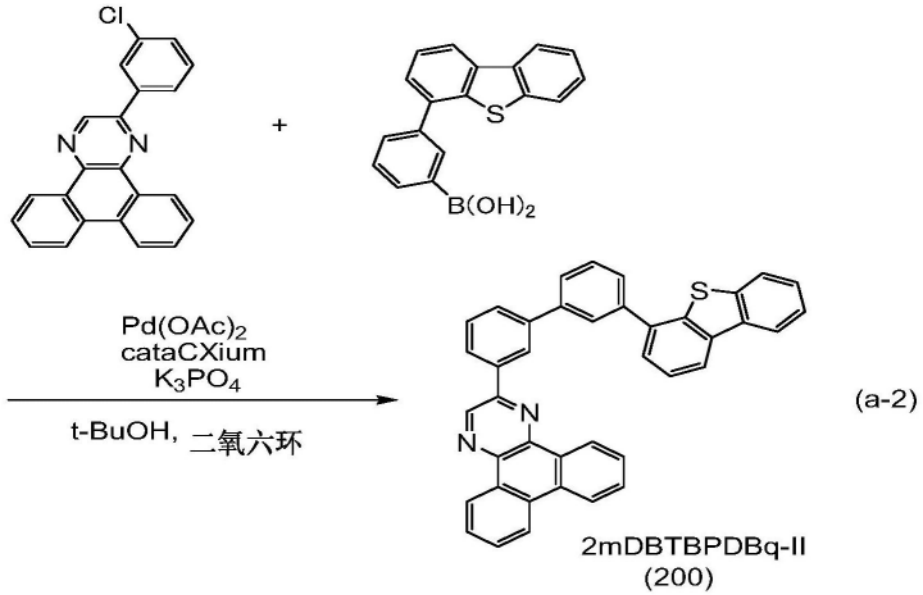
[0182] <步骤2:2-[3'-(二苯并噻吩-4-基)联苯-3-基]二苯并[f,h]喹喔啉(简称:2mDBTBPDBq-II)的合成>

[0183] 接着，将通过上述步骤1获得的2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉23.9g(70mmol)、3-(二苯并噻吩-4-基)苯基硼酸23.4g(77mmol)、磷酸三钾44.6g(210mmol)、叔丁醇15.6g(210mmol)以及二氧六环470mL放入1L三口烧瓶，用氮气置换烧瓶内。对该混合物在减压下进行搅拌来进行脱气。

[0184] 接着，对该混合物添加醋酸钯(II)157mg(0.70mmol)、二(1-金刚烷基)-正丁基膦(简称:cataCXium®)502mg(1.4mmol)、2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉。对该混合物在氮气流下且在大约100℃的温度下搅拌14小时。反应之后，利用抽滤将析出的灰色固体过滤分离出来，接着依次用乙醇、水、乙醇、甲苯对该固体进行洗涤。对所得到的固体在减压下且在100℃的温度下进行干燥，以95%的收率获得目的物37.6g。

[0185] 对所得到的目的物的固体35g利用梯度升华法进行升华纯化。在升华纯化中，在压力为2.7Pa的条件下以325℃的温度加热目的物。冷却之后，以84%的收率获得淡黄色固体29.6g。以下(a-2)示出步骤2的合成方案。

[0186]



[0187] 以下示出通过上述步骤2获得的淡黄色固体的核磁共振分光法(^{1}H-NMR)的分析结果。图7(A)和图7(B)示出^{1}H-NMR图。图7(B)为图7(A)中的横轴(δ)的6.5(ppm)至10(ppm)的範围的放大图。由此可知,在上述步骤2中获得2-[3'-(二苯并噻吩-4-基)联苯-3-基]二苯并[f,h]喹喔啉(简称:2mDBTBPDBq-II)(结构式(200))。

[0188] ^{1}H NMR(CDCl$_3$,500MHz):δ(ppm)=7.44-7.52(m,2H),7.62(d,J=5.0Hz,2H),7.68-7.75(m,3H),7.75-7.89(m,7H),8.18(s,1H),8.19-8.24(m,2H),8.35(d,J=7.0Hz,1H),8.67(d,J=8.0Hz,2H),8.70(s,1H),9.26(d,J=7.5Hz,1H),9.45(d,J=8.0Hz,1H),9.48(s,1H)。

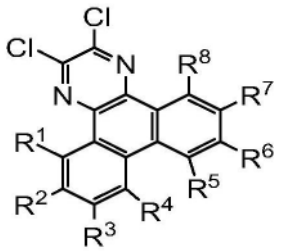
[0189] 在此,利用ACQUITY Ultra Performance LC(以下UPLC)对步骤1的原料的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(301))的纯度进行分析。由此,除了2-氯二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(301))以外,作为杂质以面积比计包含0.3%的m/z(质量电荷比)=231的物质,以面积比计包含0.8%的m/z=299的物质,算出纯度为98.7%。这些杂质分别估计为以下所示的二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(302))及2-氯二苯并[f,h]喹喔啉的单氯化物(结构式(303))。

[0190]



(302) (303)

[0191] 由以上可知,在实施方式1的合成方法(合成方案(A-1))中作为原料示出的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(A1))通常包含作为杂质的以以下通式(A1')表示的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)。

[0192] 

(A1')

[0193] 注意，在上述通式(A1')中，R^1至R^8独立地表示碳原子数为1至6的烷基、苯基、具有碳原子数为1至6的烷基作为取代基的苯基、或R^1至R^8全部表示氢。

[0194] 接着，同样地，对通过步骤1获得的化合物(中间体)2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(100))的纯度进行分析。由此，除了2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(100))以外，作为杂质以面积比计包含0.1％的m/z(质量电荷比)＝265的物质，以面积比计包含0.3％的m/z＝307的物质，以面积比计包含0.3％的m/z＝417的物质，以面积比计包含0.1％的m/z＝493的物质，算出纯度为99.2％。这些杂质分别估计为2-氯二苯并[f,h]喹喔啉、2-苯基二苯并[f,h]喹喔啉、2-[3-(3'-氯苯基)-苯基]二苯并[f,h]喹喔啉、2-{3-[3'-(3"-氯苯基)-苯基]-苯基}二苯并[f,h]喹喔啉。注意，这些杂质在此后的反应中消耗或者能够利用纯化去除。纯度分析的结果可知当利用本合成方法时，几乎检测不到来源于原料的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(301))有可能包含的杂质的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉的单氯化物(结构式(303))的杂质(氯化物(单氯化物或二氯化物))。

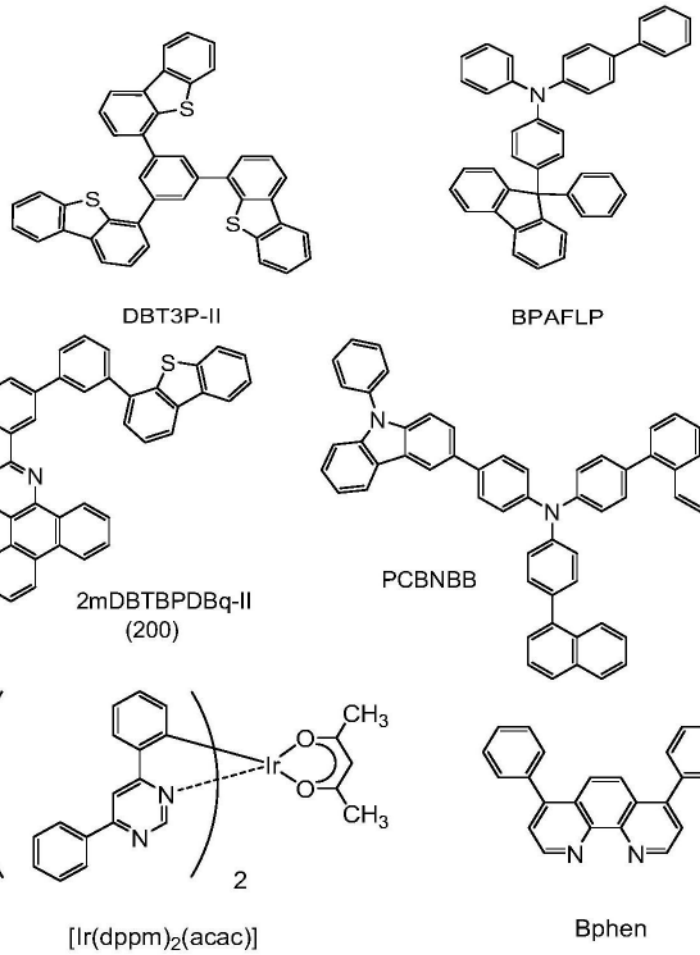
[0195] 因此，在实施方式1的合成方法(合成方案(A-1))中，即使作为原料示出的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(A1))包含作为杂质的以通式(A1')表示的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)，中间体之外的生成物也是能够去除的单氯化物，因此容易进行目的物的纯化。

[0196] 利用燃烧离子色谱法测定本实施例的目的物2mDBTBPDBq-II的氯含量。其结果，2mDBTBPDBq-II的氯含量非常低微，为1ppm(μg/g)。

[0197] 实施例2

[0198] 在本实施例中，参照图8对本发明的一个方式的发光元件1以及为了对比而制造的对比发光元件2和对比发光元件3进行说明。以下示出在本实施例中使用的材料的化学式。

[0199]



[0200] 《发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的制造》

[0201] 首先，在玻璃制衬底800上通过溅射法形成包含氧化硅的铟锡氧化物(ITSO)，由此形成用作阳极的第一电极801。其膜厚为110nm，电极面积为2mm×2mm。

[0202] 接着，作为用来在衬底800上形成发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的预处理，用水对衬底表面进行洗涤，在200℃的温度下进行1小时的焙烧，然后进行370秒的UV臭氧处理。

[0203] 然后，将衬底放入其内部被减压到10^{-4}Pa左右的真空蒸镀装置中，并在真空蒸镀装置内的加热室中，在170℃的温度下进行30分钟的真空焙烧，然后将衬底800放冷30分钟左右。

[0204] 接着，以使形成有第一电极801的面朝下的方式将衬底800固定到设置在真空蒸镀装置内的支架。在本实施例中，对通过真空蒸镀法依次形成构成EL层802的空穴注入层811、空穴传输层812、发光层813、电子传输层814及电子注入层815的情况进行说明。

[0205] 在将真空蒸镀装置的内部减压到10^{-4}Pa之后，通过以质量比满足DBT3P-II:氧化钼＝4:2的方式共蒸镀1,3,5-三(二苯并噻吩-4-基)苯(简称:DBT3P-II)和氧化钼(VI)，在第一电极801上形成空穴注入层811。将其膜厚设定为20nm。注意，共蒸镀是指使不同的多个物质从不同的蒸发源同时蒸发的蒸镀法。

[0206] 接着，通过蒸镀20nm 4-苯基-4'-(9-苯基芴-9-基)三苯胺(简称:BPAFLP)，来形成空穴传输层812。

[0207] 接着，在空穴传输层812上形成发光层813。通过共蒸镀2-[3'-(二苯并噻吩-4-基)联苯-3-基]二苯并[f,h]喹喔啉(简称：2mDBTBPDBq-II)、4,4'-二(1-萘基)-4"-(9-苯基-9H-咔唑-3-基)三苯胺(简称：PCBNBB)、(乙酰丙酮根)双(4,6-二苯基嘧啶根)铱(III)(简称：[Ir(dppm)$_2$(acac)])，来形成40nm膜厚的具有叠层结构的发光层813，其中，先以质量比满足2mDBTBPDBq-II:PCBNBB:[Ir(dppm)$_2$(acac)]＝0.7:0.3:0.05的方式形成20nm的膜，再以质量比满足2mDBTBPDBq-II:PCBNBB:[Ir(dppm)$_2$(acac)]＝0.8:0.2:0.05的方式形成20nm的膜。

[0208] 接着，通过在发光层813上蒸镀20nm 2mDBTBPDBq-II之后，蒸镀10nm红菲绕啉(简称：Bphen)，来形成电子传输层814。接着，通过在电子传输层814上蒸镀1nm氟化锂，来形成电子注入层815。

[0209] 注意，用于发光元件1(发光层813及电子传输层814)的2mDBTBPDBq-II是通过本发明的一个方式的合成方法(具体而言，在实施例1中示出的合成方法)合成的。用于对比发光元件2及对比发光元件3的2mDBTBPDBq-II是通过现有的合成方法(具体而言，在本实施例中示出的参考合成例子)合成的。

[0210] 最后，在电子注入层815上以膜厚为200nm的方式蒸镀铝来形成用作阴极的第二电极803，由此得到发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3。注意，在上述蒸镀过程中，蒸镀都利用电阻加热法进行。

[0211] 表1示出通过上述步骤得到的发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的元件结构。

[0212] [表1]

[0213]

	第一电极	空穴注入层	空穴传输层	发光层		电子传输层		电子注入层	第二电极
发光元件1	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoOx (4:2 20nm)	BPAFLP (20nm)	*	**	2mDBTBPDBq-II (本合成方法) (20nm)	Bphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
对比发光元件2	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoOx (4:2 20nm)	BPAFLP (20nm)	***	****	2mDBTBPDBq-II (现有的合成方法) (20nm)	Bphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
对比发光元件3	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoOx (4:2 20nm)	BPAFLP (20nm)	***	****	2mDBTBPDBq-II (现有的合成方法) (20nm)	Bphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
* 2mDBTBPDBq-II (本合成方法):PCBNBB:[Ir(dppm)$_2$(acac)] (0.7:0.3:0.05 20nm)									
** 2mDBTBPDBq-II (本合成方法):PCBNBB:[Ir(dppm)$_2$(acac)] (0.8:0.2:0.05 20nm)									
*** 2mDBTBPDBq-II (现有的合成方法):PCBNBB:[Ir(dppm)$_2$(acac)] (0.7:0.3:0.05 20nm)									
**** 2mDBTBPDBq-II (现有的合成方法):PCBNBB:[Ir(dppm)$_2$(acac)] (0.8:0.2:0.05 20nm)									

[0214] 此外，以不使发光元件暴露于大气的方式在氮气氛的手套箱中密封所制造的发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3(将密封材料涂敷在元件的周围，并且，当密封时进行UV处理及80℃的热处理1小时)。

[0215] 《发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的工作特性》

[0216] 对所制造的发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的工作特性进行测量。

另外，测量在室温(保持为25℃的气氛)下进行。

[0217] 图9示出发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的电流密度-亮度特性。在图9中，纵轴表示亮度(cd/m^2)，横轴表示电流密度(mA/cm^2)。另外，图10示出发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的电压-亮度特性。在图10中，纵轴表示亮度(cd/m^2)，横轴表示电压(V)。

[0218] 以下表2示出发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的1000cd/m^2附近的主要初期特性值。注意，所有的发光元件获得来源于[$Ir(dppm)_2(acac)$]的橙色发光。

[0219] [表2]

[0220]

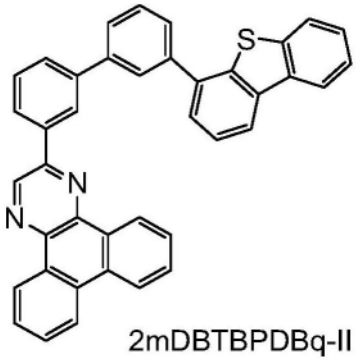
	电压 (V)	电流 (mA)	电流密度 (mA/cm^2)	亮度 (cd/m^2)	电流效率 (cd/A)	功率效率 (lm/W)
发光元件1	2.8	0.032	0.81	620	76	86
对比发光元件2	3.0	0.054	1.4	1200	86	90
对比发光元件3	2.9	0.049	1.2	1000	84	91

[0221] 图11示出发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3的可靠性测试的结果。在图11中，纵轴表示以初始亮度为100％时的归一化亮度(％)，横轴表示元件的驱动时间(h)。在可靠性测试中，将初始亮度设定为5000cd/m^2，在电流密度恒定的条件下驱动发光元件1、对比发光元件2以及对比发光元件3。

[0222] 注意，发光元件1的EL层作为EL材料使用通过本发明的一个方式的合成方法(即经由能够利用升华纯化进行分离去除的合成中间体2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的合成方法)合成的2mDBTBPDBq-II，与此相对，对比发光元件2以及对比发光元件3的EL层作为EL材料使用通过在本实施例的参考例子中示出的现有的合成方法合成的2mDBTBPDBq-II。由此可知，与对比发光元件2及对比发光元件3相比，将通过本发明的一个方式的合成方法获得的2mDBTBPDBq-II用作EL材料而制作的发光元件1为具有高可靠性且长寿命的发光元件。

[0223] (参考合成方法:现有的合成方法)

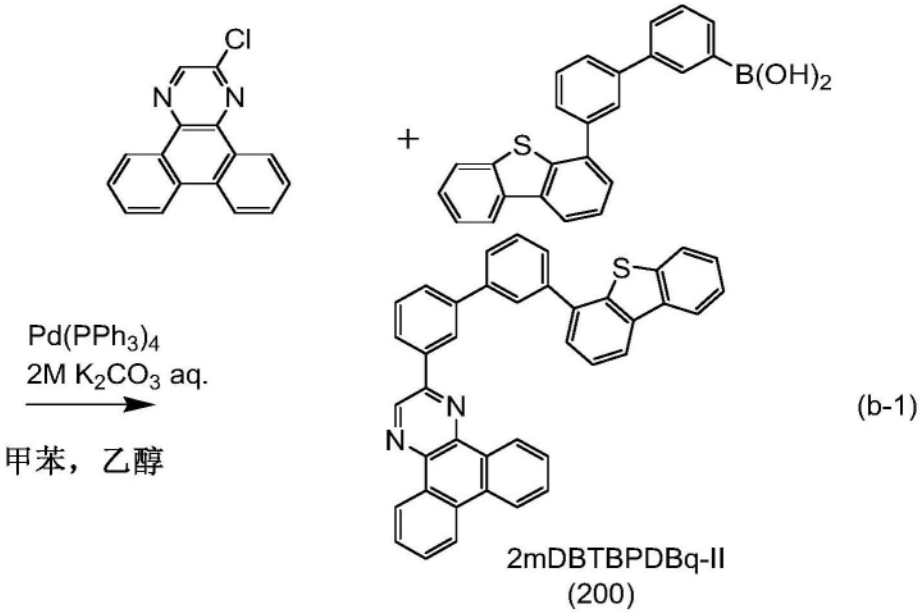
[0224] 以下作为参考合成方法示出2-[3'-(二苯并噻吩-4-基)联苯-3-基]二苯并[f,h]喹喔啉(简称:2mDBTBPDBq-II)的现有的合成方法。

[0225] 

2mDBTBPDBq-II
(200)

[0226] 《2mDBTBPDBq-II的合成》

[0227] (b-1)示出2mDBTBPDBq-II的合成方案。

[0228] 

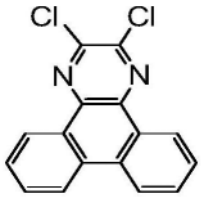
2mDBTBPDBq-II
(200)

[0229] 将2-氯二苯并[f,h]喹喔啉0.83g(3.2mmol)、3'-(二苯并噻吩-4-基)-3-联苯硼酸1.3g(3.5mmol)、甲苯40mL、乙醇4mL、2M的碳酸钾水溶液5mL放入200mL三口烧瓶。对该混合物在减压下进行搅拌来进行脱气，用氮气置换烧瓶内。对该混合物添加四(三苯基膦)钯(0)80mg(70μmol)。在氮气流下且在80℃的温度下搅拌该混合物16小时。经过指定时间之后，将析出的固体过滤分离出来，来得到黄色固体。对该固体添加乙醇，照射超声波，利用抽滤得到固体。使所获得的固体溶解于甲苯，使该甲苯溶液通过氧化铝、硅藻土(Celite)(日本和光纯药工业株式会社，目录号码:531-16855)进行抽滤，并浓缩所获得的滤液，获得黄色固体。再者，利用甲苯使该固体重结晶，结果以1.1g的产量、57％的收率获得黄色粉末。

[0230] 对通过利用上述合成方法并放大反应规模获得的黄色粉末40.3g利用梯度升华方法进行升华纯化。在升华纯化中，在压力为7.6Pa且氩气流量为100mL/min的条件下，以350℃的温度加热黄色粉末。在升华纯化之后，从加热温度为大于310℃且345℃以下的高温部中以6.4g的产量、15.9％的收率获得目的物的黄色粉末，并且从加热温度为310℃的中温部中以2.9g的产量、7.2％的收率获得目的物的黄色粉末。

[0231] 在此，利用ACQUITY Ultra Performance LC对原料的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉的纯度进行分析。由此，除了2-氯二苯并[f,h]喹喔啉以外，以面积比计包含0.4％的m/z(质量

电荷比)＝232的物质,以面积比计包含0.9％的m/z＝299的物质,算出纯度为98.7％。这些杂质分别估计为二苯并[f,h]喹喔啉及2-氯二苯并[f,h]喹喔啉的单氯化物(结构式(303))。以下示出结构式(303)。如此,可知原料的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉等2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物通常包含作为杂质的如结构式(303)所示那样的二卤化物。

[0232] 

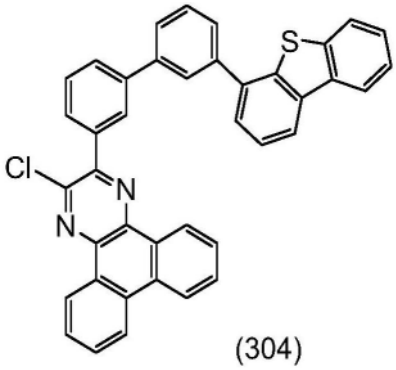
(303)

[0233] 利用UPLC(高速液相色谱法)对通过上述合成及纯化法获得的2mDBTBPDBq-II的纯度进行分析。由此,作为杂质检测出m/z(质量电荷比)＝599的物质,在从升华纯化的高温部中回收的样品中以小于0.1％的面积比检测出该物质,并且,在从中温部中回收的样品中以0.1％的面积比检测出该物质。

[0234] 为了测定2mDBTBPDBq-II的卤素浓度,利用燃烧离子色谱法进行氯的定量,结果在从升华纯化的高温部中回收的样品中检测出63ppm的氯,此外在从中温部中回收的样品中检测出276ppm的氯。

[0235] 根据上述结果,该杂质估计为2mDBTBPDBq-II的单氯化物(结构式(304))。以下示出结构式(304)。由此可知,原料所包含的以结构式(303)表示的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉的单氯化物与1当量的硼酸起反应,作为取代基包含氯的EL材料(目的物的2mDBTBPDBq-II)作为杂质而残留。另外,根据上述对比发光元件2及对比发光元件3的数据,启示该作为取代基包含氯的EL材料的氯化物会对元件的可靠性造成负面影响,与使用从升华纯化的高温部中回收的EL材料中的氯含量为63ppm的样品制造的对比发光元件2相比,使用从升华纯化的中温部中回收的氯含量更多(276ppm)的样品制造的对比发光元件3的亮度更快下降。

[0236] 因此可知,这表示EL材料的氯含量定量地与元件的可靠性(劣化率)有关,并且,能够将氯含量抑制到10ppm以下的本发明的一个方式的合成方法,可以使元件的劣化率抑制在最小限度,可以获得高可靠性。

[0237] 

(304)

[0238] 上述结果可知:如在实施方式中所述,当使用包含2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(单氯化物或二氯化物)(通式(A1'))的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉衍生物(通式(A1))进行上述合成方案(B-1)所示的反应时,如合成方案(B-1')所示,会产生二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物(通式(G1'))。此外,可知该该二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的氯化物

(通式(G1'))会对发光元件的可靠性造成严重的负面影响。

[0239] 《EL材料的氯含量与发光元件的工作特性》

[0240] 再者,详细地调查EL材料的氯含量与发光元件的可靠性之间的关系。

[0241] 对利用多个合成批次获得的用于本实施例的发光元件的2mDBTBPDBq-II进行采样,并利用燃烧离子色谱法测定氯含量。

[0242] 作为利用本发明的一个方式的合成方法获得的2mDBTBPDBq-II,得到四种的样品(样品1至样品4),氯含量都非常低微,为1ppm(μg/g)。另外,作为利用以下所示的现有的合成方法获得的2mDBTBPDBq-II,得到六种样品(样品5至样品10),氯含量如下述表3所示。

[0243] [表3]

[0244]

样品No.	归一化亮度(%)	氯浓度(ppm)	发光元件
样品1	94.13	1	发光元件1
样品2	93.66	1	发光元件2
样品3	91.97	1	发光元件3
样品4	95.63	1	发光元件4
样品5	81.96	45	发光元件5
样品6	82.16	63	发光元件6
样品7	80.38	71	发光元件7
样品8	72.16	137	发光元件8
样品9	65.02	208	发光元件9
样品10	60.66	276	发光元件10

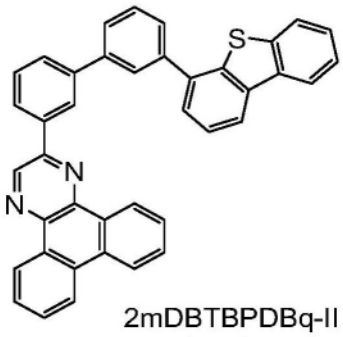
[0245] 通过使用这些样品(样品1至样品10)制造发光元件(发光元件1至发光元件10),进行450小时的可靠性测试。注意,所制造的发光元件的结构、可靠性测试的条件与上述相同。

[0246] 在图13中,示出以横轴为各发光元件的经过450小时时的归一化亮度(%),以纵轴为用于各发光元件的样品的氯含量(ppm)的图以及从该图求出的近似曲线。由该近似曲线可知:当氯含量为10至20ppm左右以上时,随着氯含量的下降,可靠性也提高,但是当氯含量为其以下时,可靠性不太改变。即,可知通过使EL材料的氯含量为10ppm以下,可以获得稳定的高可靠性。

[0247] 实施例3

[0248] 《合成实例2》

[0249] 在本实施例中,作为本发明的一个方式的合成方法,说明改变了实施例1的反应条件的2-[3'-(二苯并噻吩-4-基)联苯-3-基]二苯并[f,h]喹喔啉(简称:2mDBTBPDBq-II)(结构式(200))的合成方法。以下示出2mDBTBPDBq-II的结构。

[0250] 

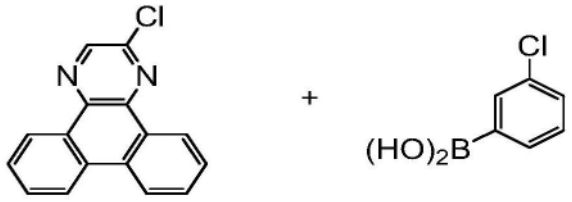
2mDBTBPDBq-II
(200)

[0251] <步骤1:2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉的合成>

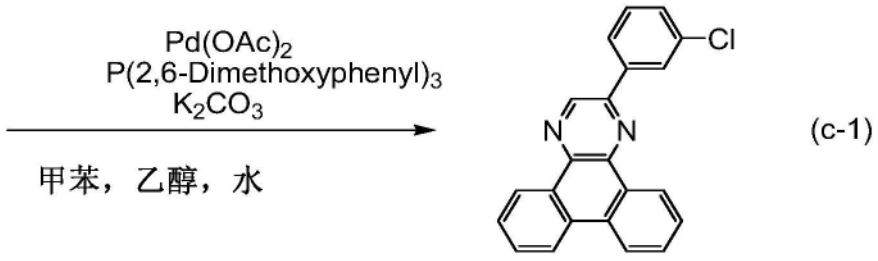
[0252] 首先,将2-氯二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(301))132.4g(500mmol)、3-氯苯基硼酸86.0g(550mmol)、碳酸钾159.0g(1.5mol)、甲苯2.5L、乙醇630mL以及水750mL放入1L三口烧瓶,在减压下进行脱气处理,用氮气置换烧瓶内。

[0253] 接着,对该混合物添加醋酸钯(II)(简称:$Pd(OAc)_2$)2.23g(10mmol)、三(2,6-二甲氧基苯基)膦8.85g(20mmol),将混合物加热回流大约4小时。此后,将烧瓶的温度冷却至室温,将析出物过滤分离出来。对该析出物用水、乙醇以及甲苯进行洗涤。将所得到的滤渣溶解于被加热的甲苯中,利用硅藻土滤过该溶液。将所得到的滤液冷却至室温,将析出物过滤分离出来。对所得到的滤渣以100℃进行减压干燥,以88%的收率获得目的物的淡黄色固体149.5g。

[0254] (c-1)示出步骤1的合成方案。

[0255] 

(301)

[0256] 

(c-1)

(100)

[0257] 对通过上述步骤1获得的淡黄色固体利用核磁共振分光法(^1H-NMR)进行分析,确认到在上述步骤1中,获得2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(100))。

[0258] <步骤2:2-[3'-(二苯并噻吩-4-基)联苯-3-基]二苯并[f,h]喹喔啉(简称:2mDBTBPDBq-II)的合成>

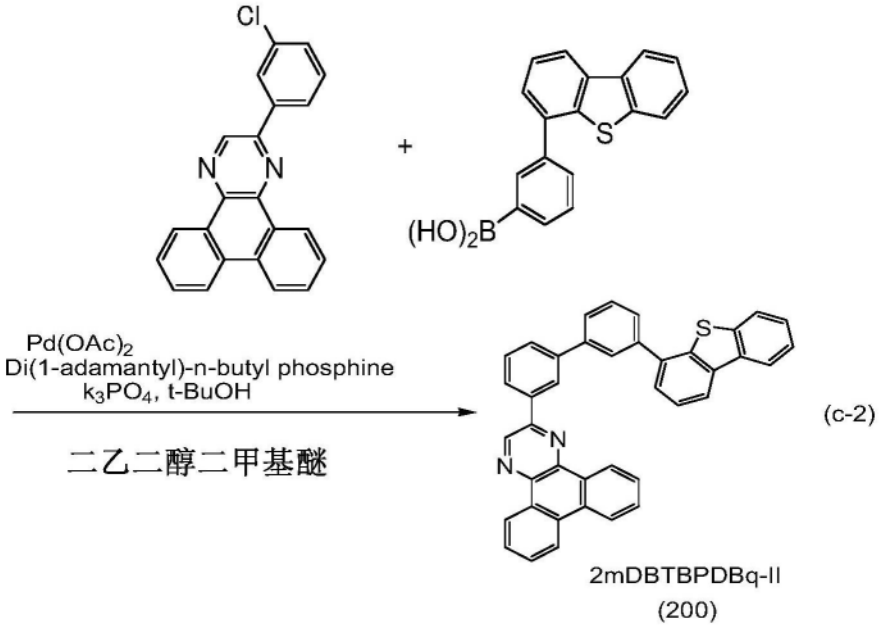
[0259] 接着,将通过上述步骤1获得的2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉35.0g(103mmol)、3-(二苯并噻吩-4-基)苯基硼酸33.5g(110mmol)、磷酸三钾63.7g(300mmol)、叔丁醇29mL、二乙二醇二甲基醚670mL放入1L三口烧瓶,用氮气置换烧瓶内。对该混合物在减

压下进行搅拌来进行脱气。

[0260] 接着，对该混合物添加醋酸钯(II)0.69g(3.1mmol)、二(1-金刚烷基)-正丁基膦(简称：cataCXium®)2.22g(6.2mmol)，将混合物加热回流大约8小时。此后，将烧瓶的温度冷却至室温，将析出物过滤分离出来。对该析出物用水、乙醇以及甲苯进行洗涤。将所得到的滤渣溶解于被加热的甲苯中，利用硅藻土滤过该溶液。将所得到的滤液冷却至室温，将析出物过滤分离出来。对所得到的滤渣以100℃进行减压干燥，以94％的收率获得目的物的淡黄色结晶性固体53.0g。

[0261] 对通过利用上述方法并放大反应规模的反应获得的目的物的固体110g利用梯度升华法进行升华纯化。在升华纯化中，在压力为5.6×10^{-3}Pa的条件下以350℃的温度加热目的物。冷却之后，以62％的收率获得淡黄色固体67.2g。以下(c-2)示出步骤2的合成方案。

[0262]



[0263] 对通过上述步骤2获得的淡黄色固体利用核磁共振分光法(^{1}H-NMR)进行分析，确认到在上述步骤2中，获得2-[3'-(二苯并噻吩-4-基)联苯-3-基]二苯并[f,h]喹喔啉(简称:2mDBTBPDBq-II)(结构式(200))。

[0264] 接着，对通过步骤1获得的化合物(中间体)2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(100))的纯度同样地进行分析。由此可知，除了2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(100))以外，作为杂质以面积比计包含0.2％的m/z(质量电荷比)＝265的物质，以面积比计包含0.2％的m/z＝307的物质，以面积比计包含0.1％的m/z＝417的物质，以面积比计包含0.1％的m/z＝459的物质，以面积比计包含0.2％的m/z＝611的物质，算出纯度为99.2％。这些杂质分别估计为2-氯二苯并[f,h]喹喔啉、2-苯基二苯并[f,h]喹喔啉、2-(3-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉、2-(1,1':3',1"-三联苯)二苯并[f,h]喹喔啉，2,2'-(1,1'-联苯-3,3'-二基)二(二苯并[f,h]喹喔啉)。注意，这些杂质在此后的反应中消耗或者能够利用纯化去除。由纯度分析的结果可知当利用本合成方法时，几乎检测不到来源于原料的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(301))有可能包含的杂质的2-氯二苯并[f,h]喹喔啉的单氯化物(结构式(303))的杂质(氯化物(单氯化物或二氯化物))。

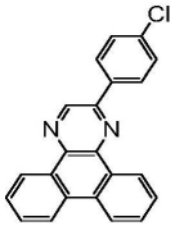
[0265] 利用燃烧离子色谱法测定本实施例的目的物2mDBTBPDBq-II的氯含量。其结果，

2mDBTBPDBq-II的氯含量非常低微，为1ppm(μg/g)。由此可知，即使改变反应条件，也可以实施本发明。

[0266] 实施例4

[0267] 《合成实例3》

[0268] 在本实施例中，作为本发明的一个方式的能够利用升华纯化进行分离去除的合成中间体2-(氯芳基)二苯并[f,h]喹喔啉衍生物的具体合成方法，说明实施方式1的以结构式(101)表示的2-(4-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉的合成方法。以下示出2-(4-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉的结构。

[0269] 

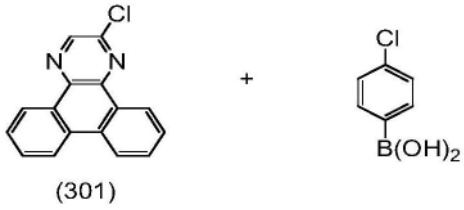
(101)

[0270] <步骤:2-(4-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉的合成>

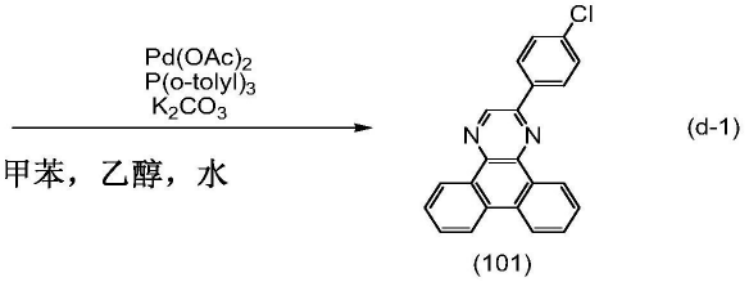
[0271] 首先，将2-氯二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(301))4.0g(15mmol)、4-氯苯基硼酸2.5g(17mmol)、甲苯76mL、乙醇19mL以及2M碳酸钾水溶液22.7mL放入200mL三口烧瓶。对该混合物在减压下进行搅拌来进行脱气，用氮气置换烧瓶内。

[0272] 接着，对该混合物添加醋酸钯(II)(简称:$Pd(OAc)_2$)68mg(15mmol)以及三(2-甲基苯基)膦0.18g(0.60mmol)。对该混合物在氮气流下且在80℃的温度下搅拌8小时。经过指定时间之后，将析出的固体过滤分离出来，来得到褐色固体。使所得到的固体的甲苯溶液通过氧化铝、硅藻土进行抽滤，浓缩所得到的滤液，获得黄色固体。再者，利用甲苯使该固体重结晶，结果以3.8g的产量、75%的收率获得黄色固体。

[0273] (d-1)示出上述步骤的合成方案。

[0274] 

(301)

[0275] 

(101)

(d-1)

[0276] 以下示出通过上述步骤获得的黄色固体的核磁共振分光法(^{1}H-NMR)的分析结果。图12(A)和图12(B)示出^{1}H-NMR图。图12(B)为图12(A)中的横轴(δ)的7(ppm)至10(ppm)的範围的放大图。由此可知，在上述步骤中，获得2-(4-氯苯基)二苯并[f,h]喹喔啉(结构式(101))。

[0277] ^{1}H NMR($CDCl_3$,500MHz):δ(ppm)＝7.45-7.50(m,3H),7.54-7.60(m,3H),7.64(d,J＝8.5Hz,1H),7.71(dd,J＝8.0Hz,1.7Hz,1H),7.82-7.86(m,3H),8.17(dd,J＝8.0Hz,1.8Hz,1H),8.19-8.23(m,1H)。

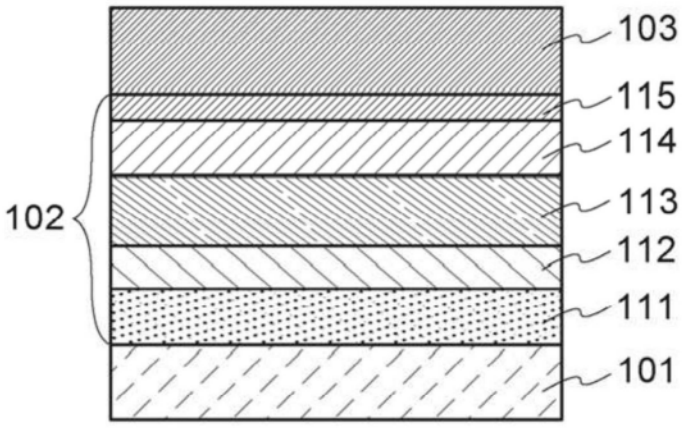


图1

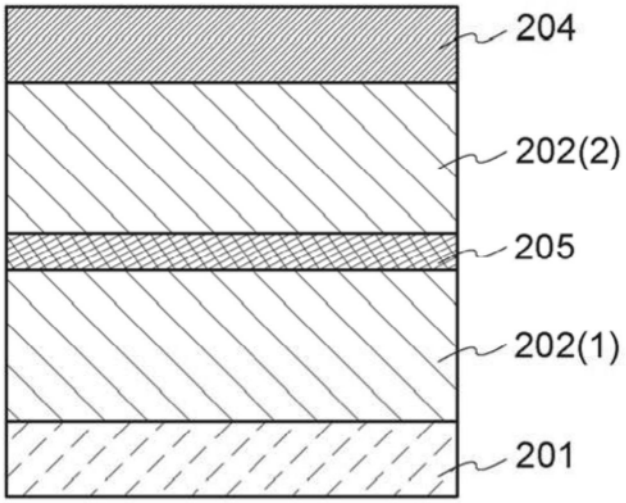


图2A

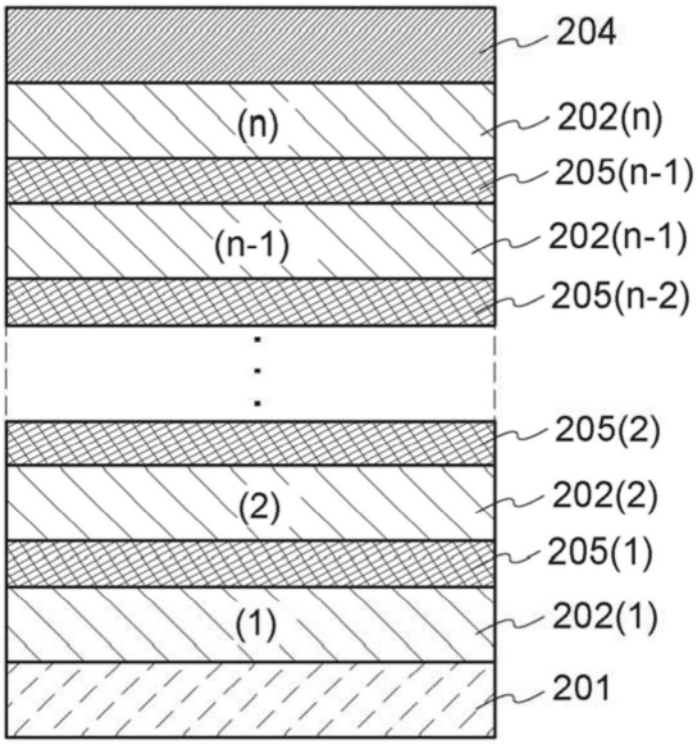

204
(n)
202(n)
205(n-1)
(n-1)
202(n-1)
205(n-2)
205(2)
(2)
202(2)
205(1)
(1)
202(1)
201

图2B

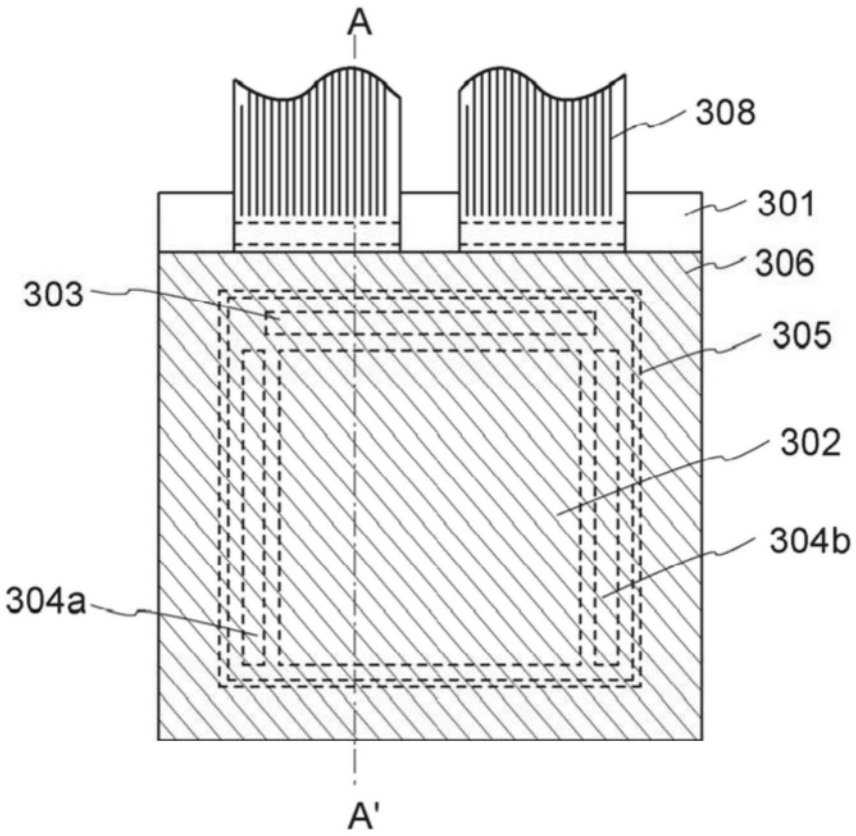

A
308
301
306
303
305
302
304b
304a
A'

图3A

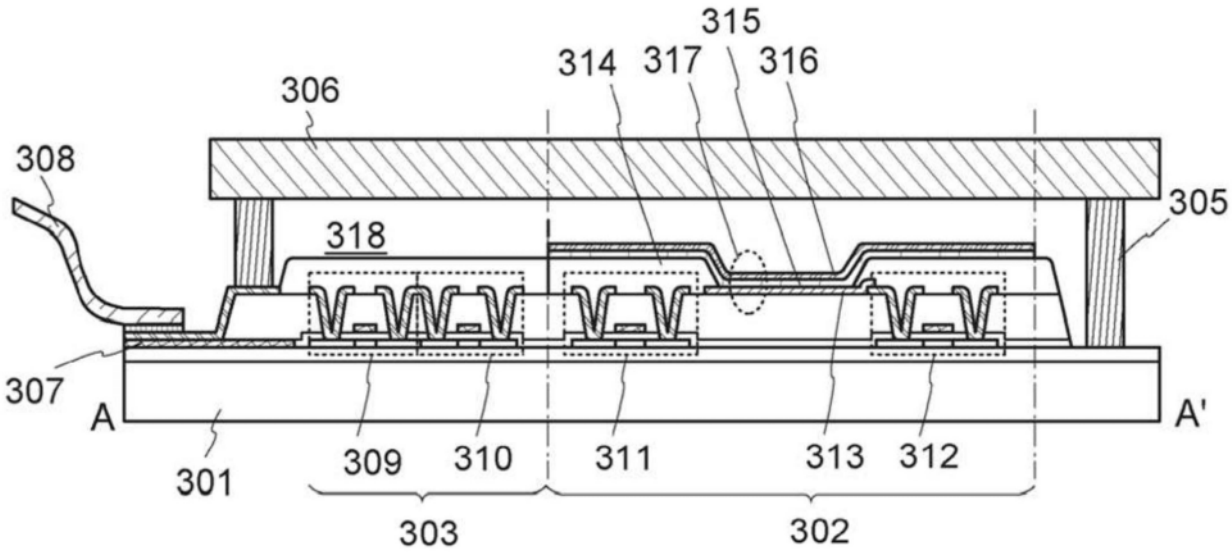

315
314
317
316
306
308
305
318
307
A
A'
301
309
310
311
313
312
303
302

图3B

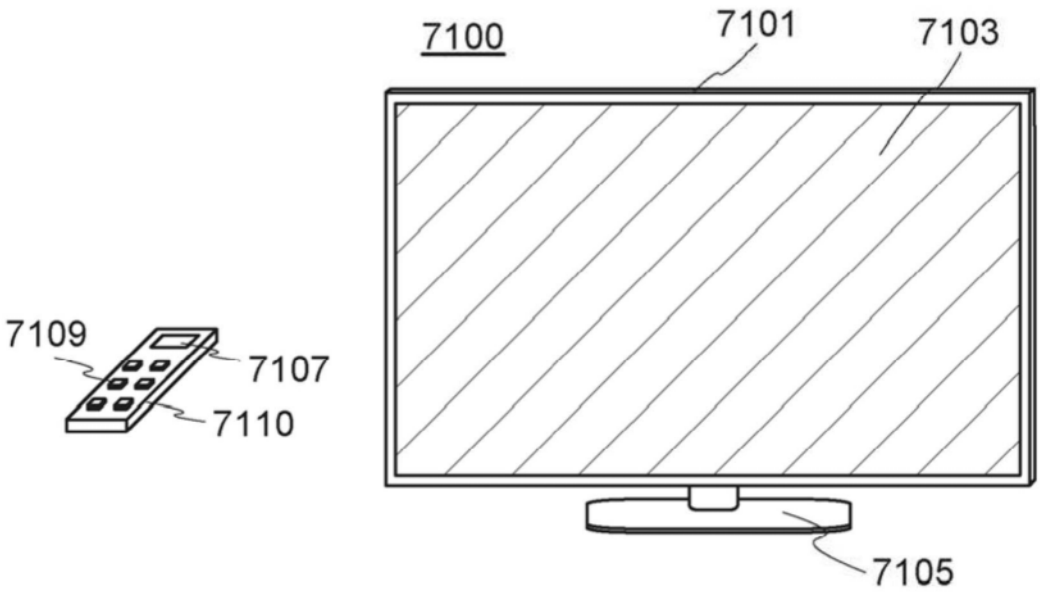

7100
7101
7103
7109
7107
7110
7105

图4A

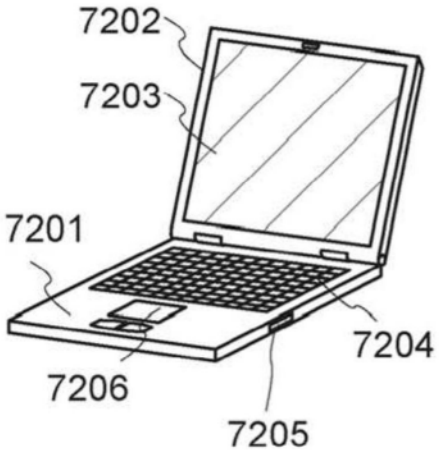

7202
7203
7201
7204
7206
7205

图4B


7305
7304
7306
7311
7302
7313
7321
7322
7312

图4C

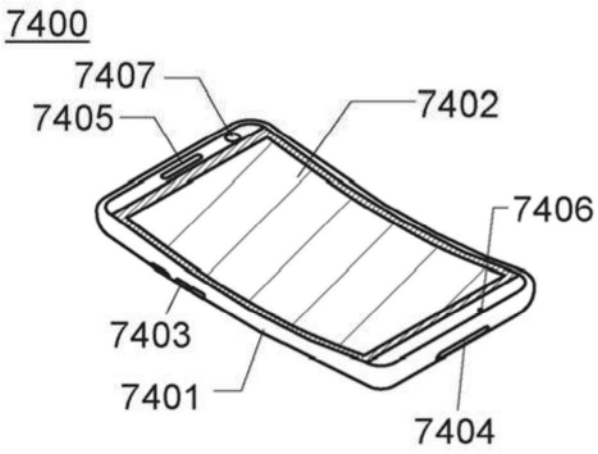

7400
7407
7405
7402
7406
7403
7401
7404

图4D

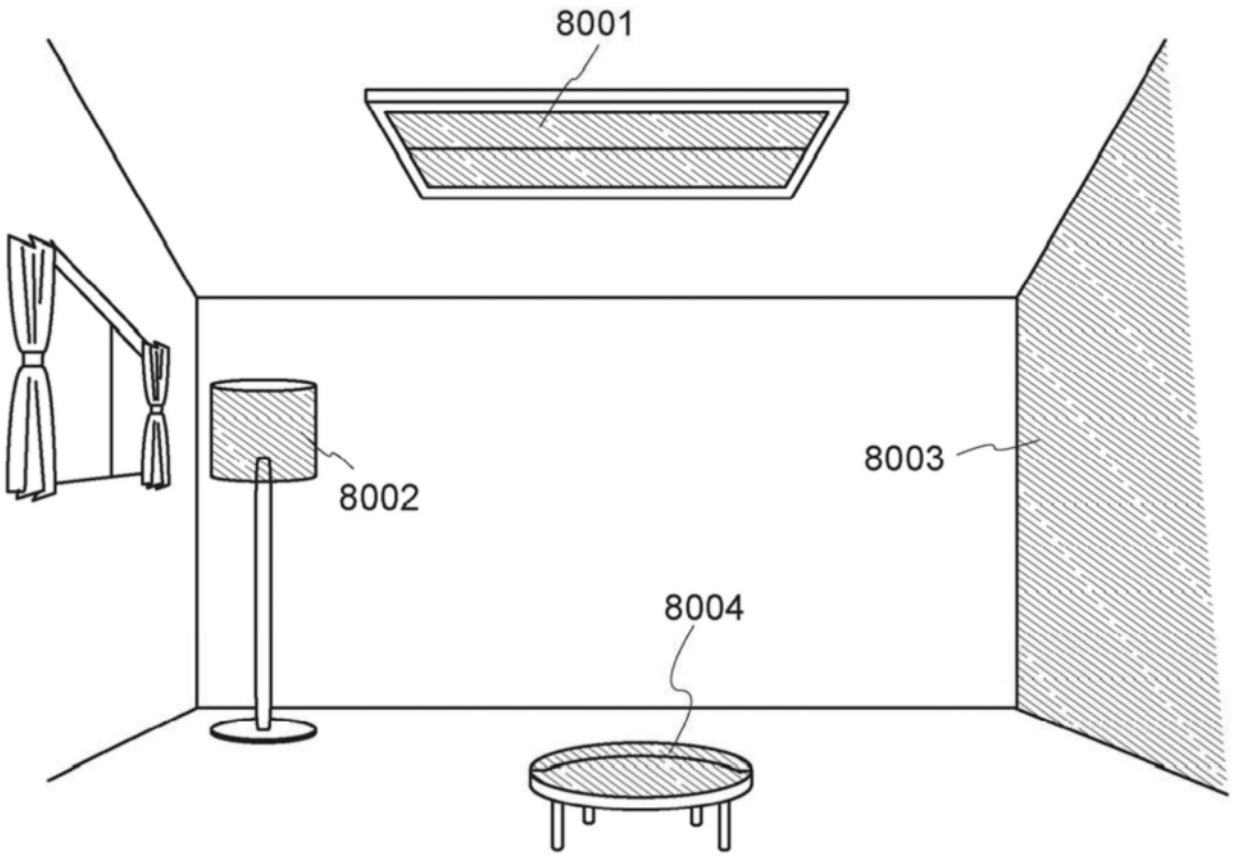


图5

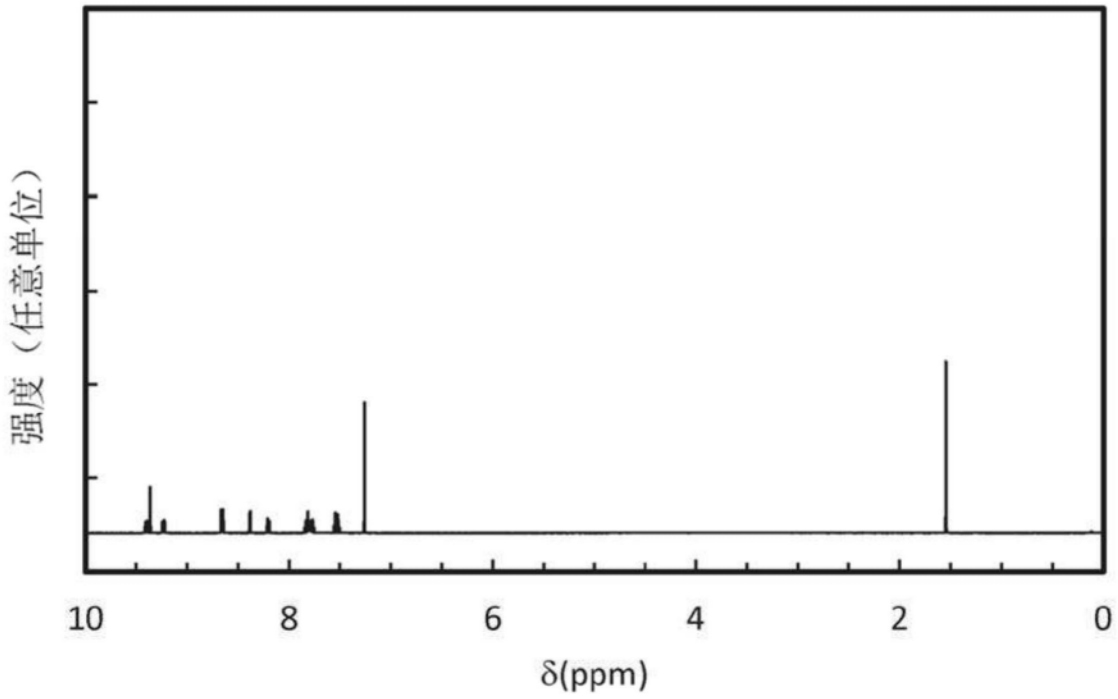


图6A

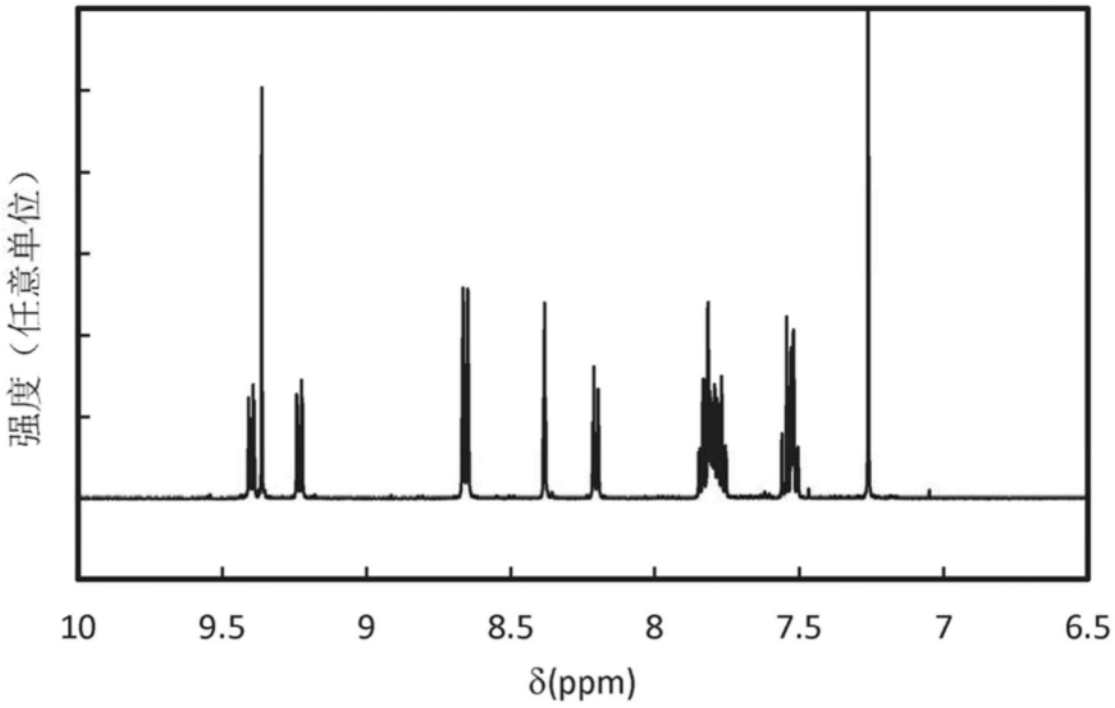


图6B

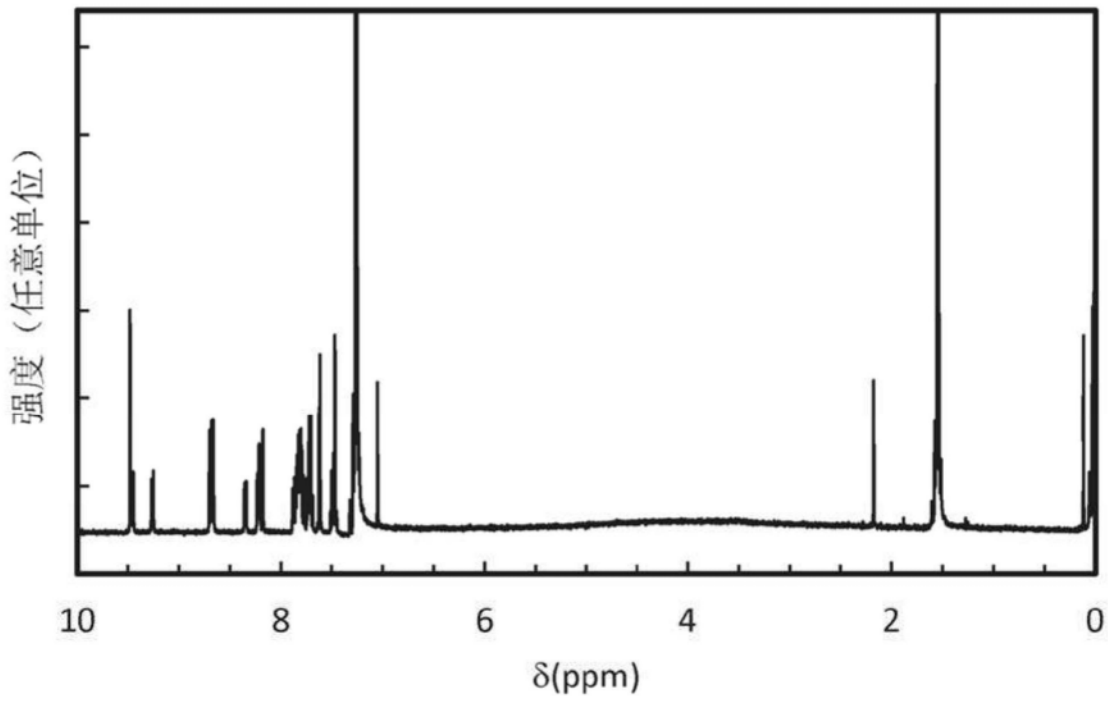


图7A

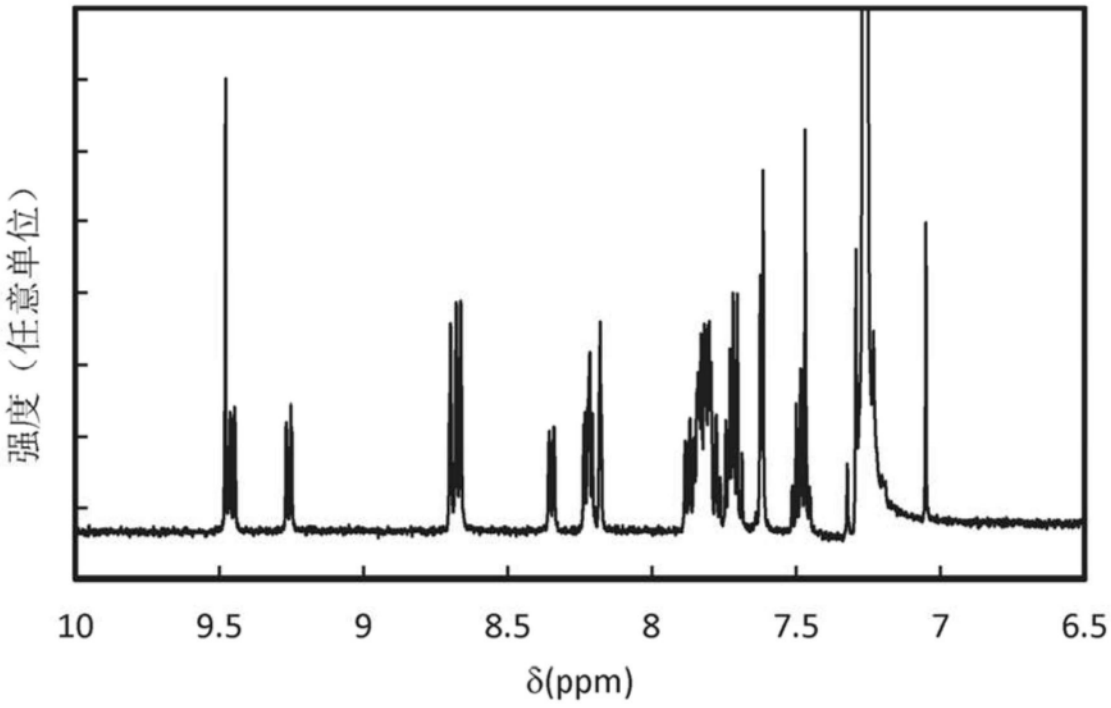

强度（任意单位）
10
9.5
9
8.5
8
7.5
7
6.5
δ(ppm)

图7B

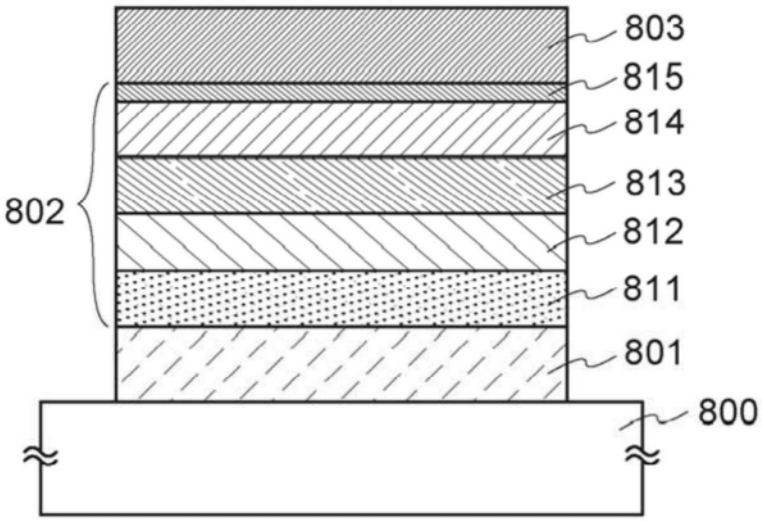

803
815
814
813
812
811
801
800
802

图8

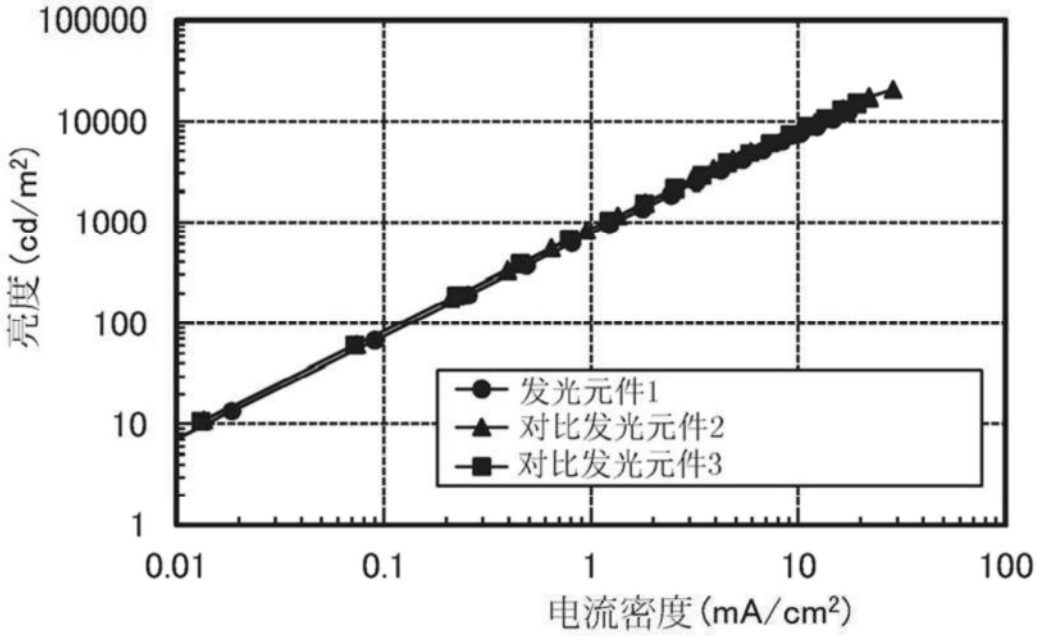

100000
10000
1000
100
10
1
亮度(cd/m²)
0.01
0.1
1
10
100
电流密度(mA/cm²)
发光元件1
对比发光元件2
对比发光元件3

图9

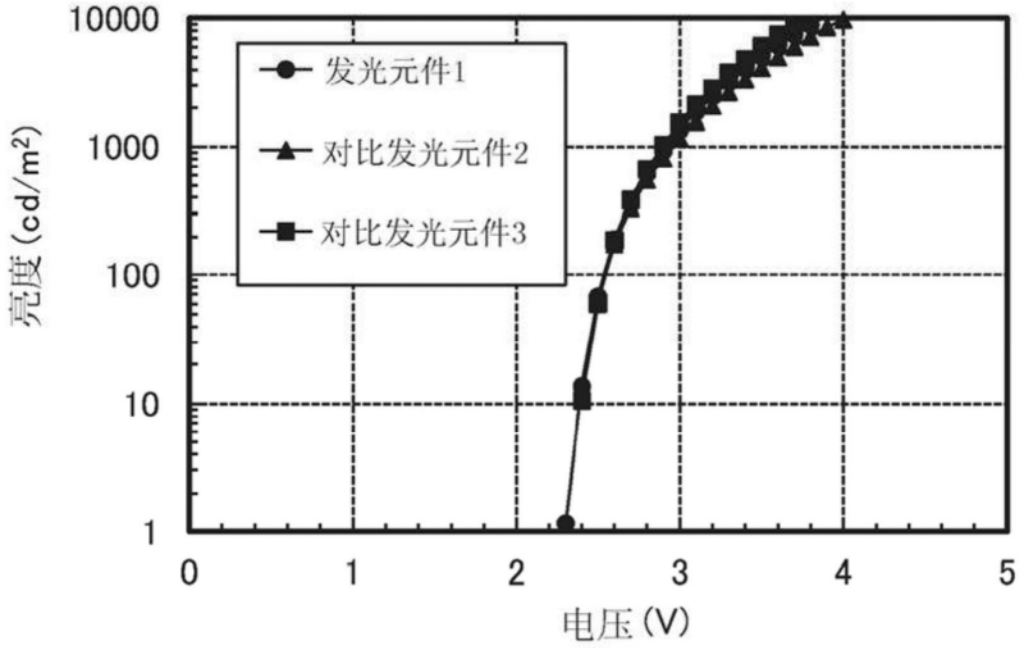

10000
1000
100
10
1
亮度(cd/m²)
0
1
2
3
4
5
电压(V)
发光元件1
对比发光元件2
对比发光元件3

图10

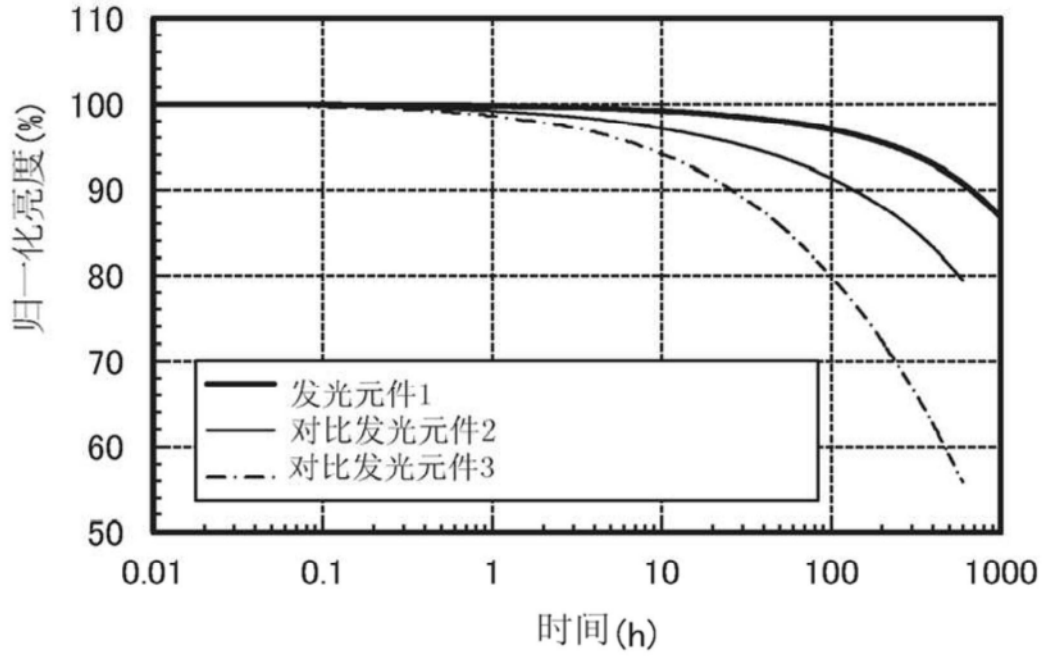

110
100
90
80
70
60
50
归一化亮度(%)
发光元件1
对比发光元件2
对比发光元件3
0.01
0.1
1
10
100
1000
时间(h)

图11

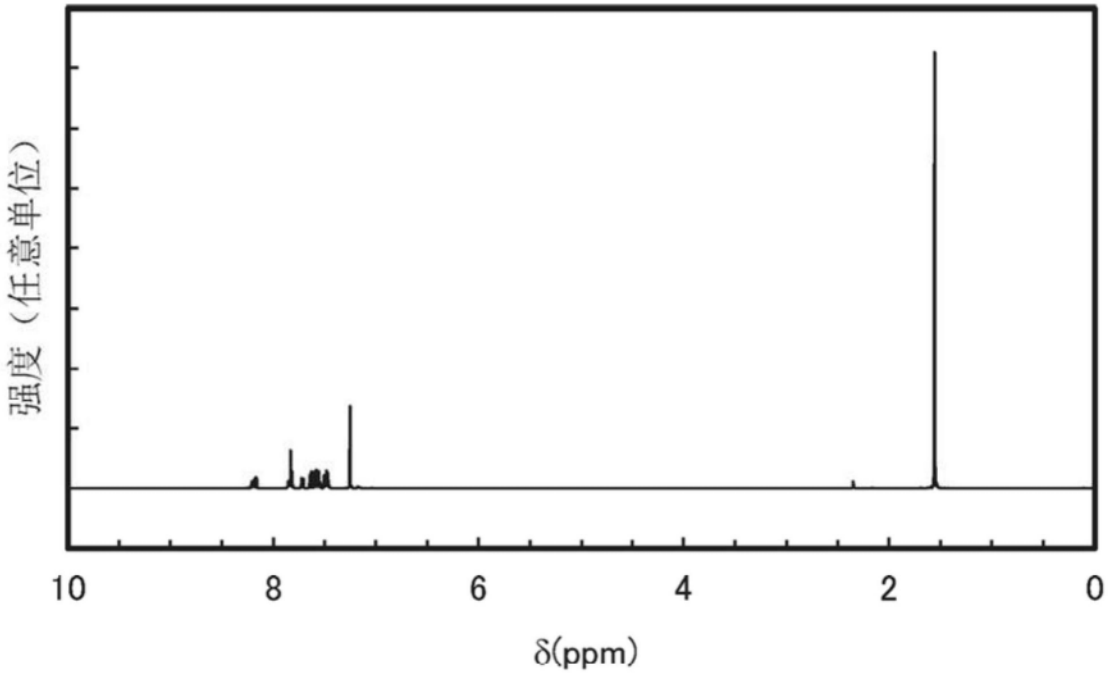

强度（任意单位）
10
8
6
4
2
0
δ(ppm)

图12A

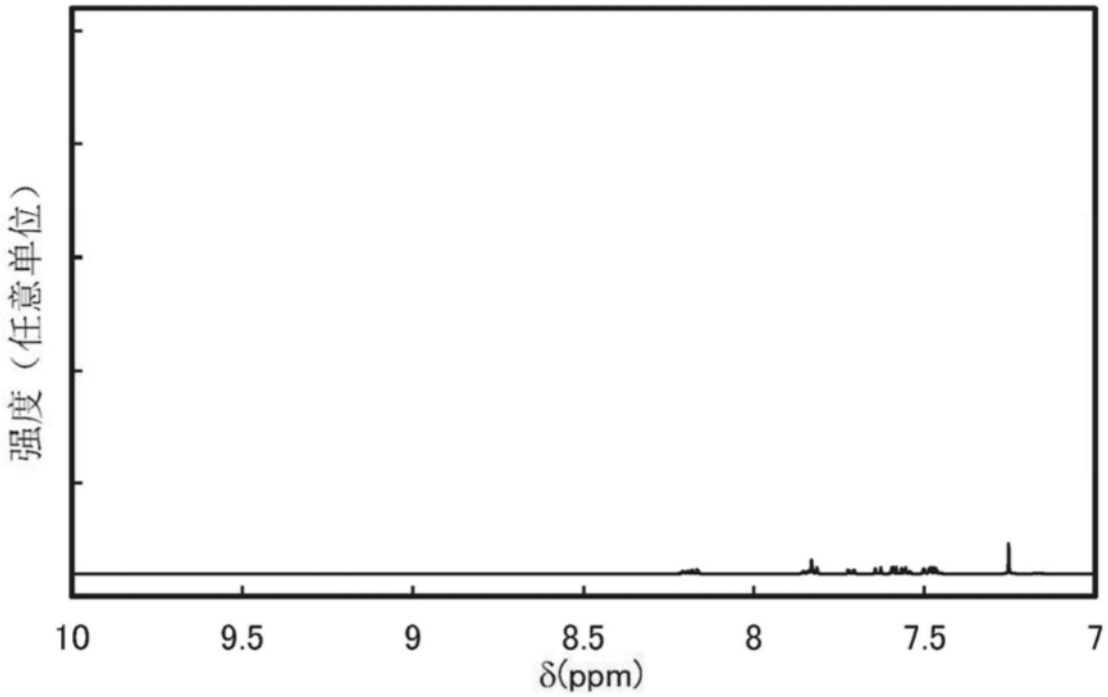

强度（任意单位）
10
9.5
9
8.5
8
7.5
7
δ(ppm)

图12B

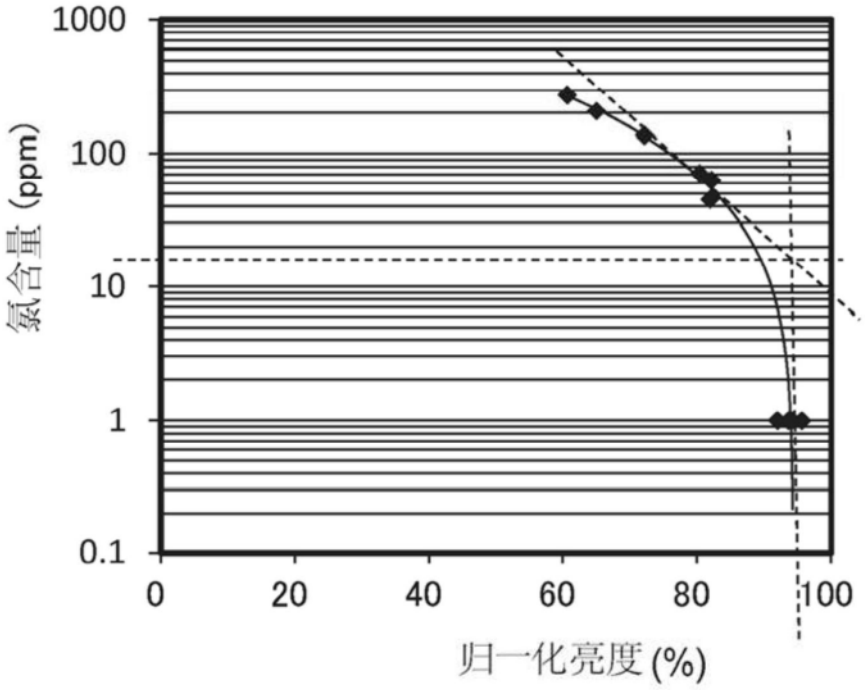

1000
100
10
1
0.1
氮含量 (ppm)
0
20
40
60
80
100
归一化亮度 (%)

图13