

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6088767号  
(P6088767)

(45) 発行日 平成29年3月1日(2017.3.1)

(24) 登録日 平成29年2月10日(2017.2.10)

(51) Int.Cl.	F 1		
C07D 409/10	(2006.01)	C07D 409/10	C S P
C07D 405/10	(2006.01)	C07D 405/10	
H01L 51/50	(2006.01)	H05B 33/14	B
C09K 11/06	(2006.01)	H05B 33/22	B
		C09K 11/06	6 9 0

請求項の数 6 (全 107 頁)

(21) 出願番号	特願2012-191234 (P2012-191234)	(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
(22) 出願日	平成24年8月31日 (2012.8.31)	(72) 発明者	瀬尾 哲史 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社 半導体エネルギー研究所内
(65) 公開番号	特開2014-29973 (P2014-29973A)	(72) 発明者	下垣 智子 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
(43) 公開日	平成26年2月13日 (2014.2.13)	(72) 発明者	鈴木 宏記 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社 半導体エネルギー研究所内
審査請求日	平成27年8月4日 (2015.8.4)	(72) 発明者	荻田 香 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社 半導体エネルギー研究所内
(31) 優先権主張番号	特願2011-188235 (P2011-188235)		
(32) 優先日	平成23年8月31日 (2011.8.31)		
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		
(31) 優先権主張番号	特願2012-144180 (P2012-144180)		
(32) 優先日	平成24年6月27日 (2012.6.27)		
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		

最終頁に続く

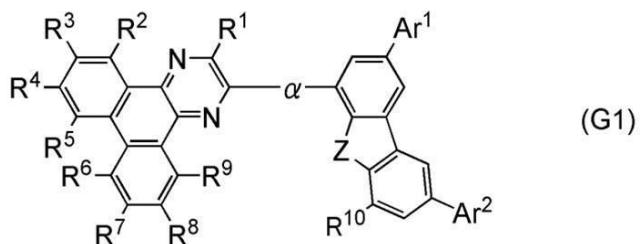
(54) 【発明の名称】複素環化合物

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

一般式 (G1) で表される構造を有する複素環化合物。

## 【化 1】



10

(式中、Ar<sup>1</sup>は置換または無置換のフェニレン基を表し、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>は置換または無置換のビフェニル基を表し、R<sup>1</sup>～R<sup>10</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基、のいずれかを表し、Zは酸素または硫黄を表す。)

## 【請求項 2】

請求項1において、

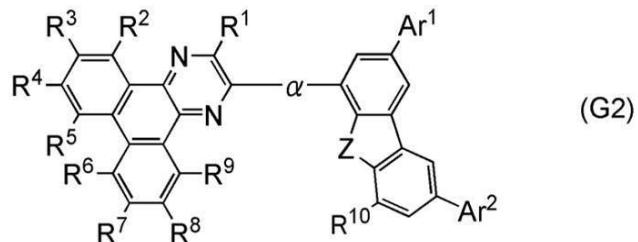
20

前記フェニレン基は、m-フェニレン基であることを特徴とする複素環化合物。

【請求項3】

一般式(G2)で表される構造を有する複素環化合物。

【化2】



(式中、 $\alpha$ は置換または無置換のビフェニルジイル基を表し、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、のいずれかを表し、 $R^1 \sim R^{10}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基、のいずれかを表し、Zは酸素または硫黄を表す。)

【請求項4】

請求項3において、

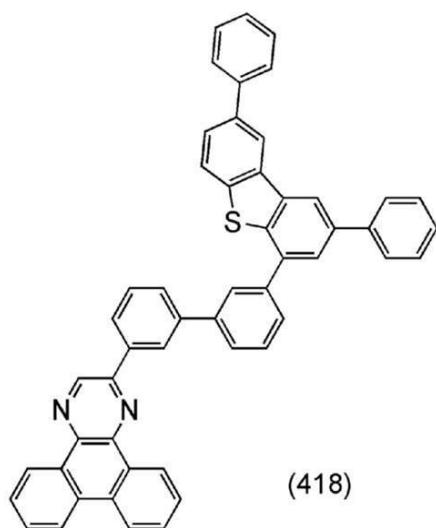
前記ビフェニルジイル基は、ビフェニル-3,3'-ジイル基であることを特徴とする複素環化合物。

20

【請求項5】

構造式(418)で表される複素環化合物。

【化3】



【請求項6】

40

構造式(400)で表される複素環化合物。

## 【化4】



## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、発光素子、発光装置、電子機器、照明装置及び複素環化合物に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

近年、エレクトロルミネッセンス (E L : Electro Luminescence) を利用した発光素子の研究開発が盛んに行われている。これら発光素子の基本的な構成は、一対の電極間に発光物質を含む層を挟んだものである。この素子に電圧を印加することにより、発光物質からの発光を得ることができる。

20

## 【0003】

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

## 【0004】

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

30

## 【0005】

そのエレクトロルミネッセンスを利用した発光素子は、発光物質が有機化合物であるか、無機化合物であるかによって大別できる。発光物質に有機化合物を用い、一対の電極間に当該有機化合物を含む層を設けた有機EL素子の場合、発光素子に電圧を印加することにより、陰極から電子が、陽極から正孔（ホール）がそれぞれ発光性の有機化合物を含む層に注入され、電流が流れる。そして、注入した電子及び正孔が発光性の有機化合物を励起状態に至らしめ、励起された発光性の有機化合物から発光を得るものである。

40

## 【0006】

有機化合物が形成する励起状態の種類としては、一重項励起状態と三重項励起状態が可能であり、一重項励起状態 ( $S^*$ ) からの発光が蛍光、三重項励起状態 ( $T^*$ ) からの発光が燐光と呼ばれている。また、発光素子におけるその統計的な生成比率は、 $S^* : T^* = 1 : 3$  であると考えられている。

## 【0007】

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

50

：3であることを根拠に25%とされている。

【0008】

一方、三重項励起状態を発光に変換する化合物（以下、燐光性化合物と称す）を用いれば、三重項励起状態からの発光（燐光）が観測される。また、燐光性化合物は項間交差（一重項励起状態から三重項励起状態へ移ること）が起こりやすいため、内部量子効率は75～100%まで理論上は可能となる。つまり、蛍光性化合物に比べて3～4倍の発光効率が可能となる。このような理由から、高効率な発光素子を実現するために、燐光性化合物を用いた発光素子の開発が近年盛んに行われている。

【0009】

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

【0010】

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

【0011】

また、一重項励起エネルギー（基底状態と一重項励起状態とのエネルギー差）は三重項励起エネルギーよりも大きいため、大きな三重項励起エネルギーを有する物質は大きな一重項励起エネルギーをも有する。したがって、上述したような大きな三重項励起エネルギーを有する物質は、蛍光性化合物を発光物質として用いた発光素子においても有益である。

【0012】

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

【先行技術文献】

【特許文献】

【0013】

【特許文献1】国際公開第03/058667号

【特許文献2】特開2007-189001号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0014】

本発明の一態様では、耐熱性に優れ、発光性の物質（蛍光を発する物質、または燐光を発する物質）に対するホスト材料として用いることができる新規の複素環化合物を提供する。また、本発明の一態様は、耐熱性に優れ、駆動電圧が低く、電流効率が高い、長寿命な発光素子を提供する。また、本発明の一態様は、この発光素子を用いることにより、消費電力の低減された発光装置、電子機器、及び照明装置を提供する。

【課題を解決するための手段】

【0015】

本発明の一態様は、1つのジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環、1つの正孔輸送性骨格を有する環、およびベンゼン環を含み、前記ベンゼン環の数が2個以上8個以下の複素環化合物を含む発光素子である。

【0016】

また、本発明の一態様は、1つのジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環、および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含み、分子量が564以上1000以下である複素環化合物を含む発光素子である。本発明の一態様の複素環化合物は、真空蒸着で均質な膜を形成できるが、分子量が高すぎると蒸着温度が上がり、熱分解等の問題が生じる。したがって、分

10

20

30

40

50

子量は上記範囲が好ましい。また、該複素環化合物は、1つのジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環、1つの正孔輸送性骨格を有する環、および2個以上8個以下のベンゼン環を含むことが好ましい。

【0017】

本発明の別の一態様は、1つのジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環、1つの正孔輸送性骨格を有する環、およびベンゼン環を含み、前記ベンゼン環の数が4個以上8個以下である複素環化合物を含む発光素子である。

【0018】

また、本発明の一態様は、1つのジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環、および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含み、分子量が716以上1000以下である複素環化合物を含む発光素子である。本発明の一態様の複素環化合物は、真空蒸着で均質な膜を形成できるが、分子量が高すぎると蒸着温度が上がり、熱分解等の問題が生じる。したがって、分子量は上記範囲が好ましい。また、該複素環化合物は、1つのジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環、1つの正孔輸送性骨格を有する環、および4個以上8個以下のベンゼン環を含むことが好ましい。

【0019】

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

【0020】

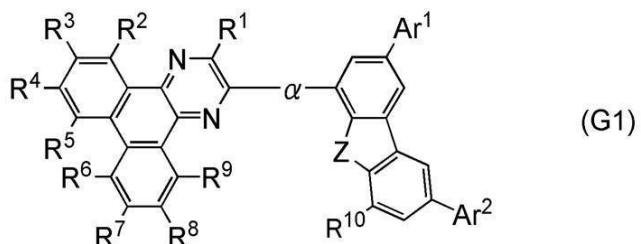
また、上記各構成において、複素環化合物がビフェニル基またはビフェニルジイル基を有することを特徴とする。ビフェニル骨格は、耐熱性を向上させると共に、嵩高い骨格を形成して結晶化を抑制できる。このような観点では特に、*m*-ビフェニル基や3,3'-ビフェニルジイル基が好ましい。

【0021】

また、本発明の別の一態様は、下記一般式(G1)で表される複素環化合物である。

【0022】

【化1】



【0023】

但し、式中、 $\alpha$ は置換または無置換のフェニレン基を表し、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は置換または無置換のビフェニル基を表し、 $R^1$ ～ $R^{10}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基、のいずれかを表し、 $Z$ は酸素または硫黄を表す。

【0024】

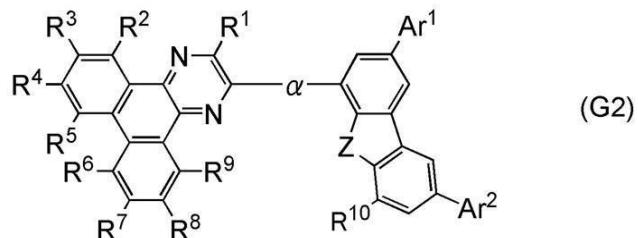
なお、上記構成において、 $\alpha$ で表されるフェニレン基は、*m*-フェニレン基であることを特徴とする。

【0025】

また、本発明の別の一態様は、下記一般式(G2)で表される複素環化合物である。

【0026】

【化2】



【0027】

10

但し、式中、 $\alpha$ は置換または無置換のビフェニルジイル基を表し、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ は置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、のいずれかを表し、 $R^1$ ～ $R^{10}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基、のいずれかを表し、 $Z$ は酸素または硫黄を表す。

【0028】

なお、上記構成において、 $\alpha$ で表されるビフェニルジイル基は、ビフェニル-3,3'-ジイル基であることを特徴とする。

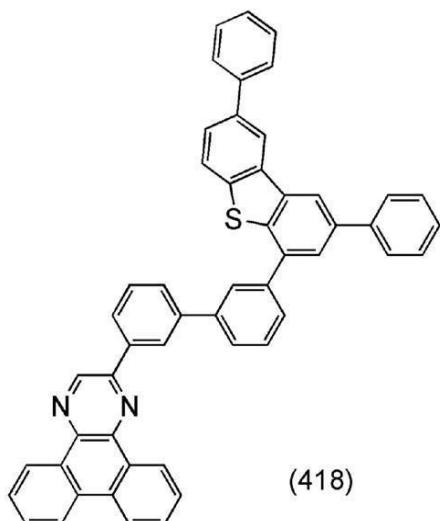
【0029】

また、本発明の別の一態様は、下記構造式(418)で表される複素環化合物である。

【0030】

20

【化3】



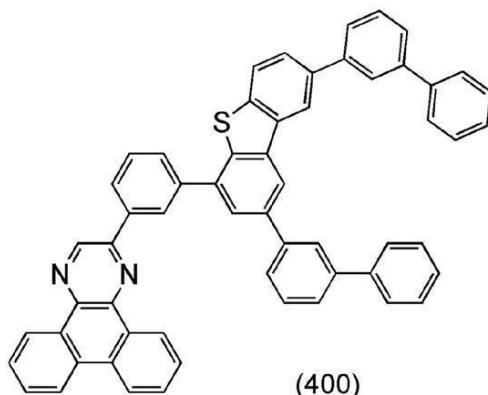
30

【0031】

また、本発明の別の一態様は、下記構造式(400)で表される複素環化合物である。

【0032】

## 【化4】



## 【0033】

また、本発明の一態様である複素環化合物は、ジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環に加えて正孔輸送骨格を有するため、正孔を受け取ることが容易となる。また、ベンゼン環を複数有する構造であるため、耐熱性にも優れている。したがって、本発明の一態様である複素環化合物を発光層のホスト材料に用いることで、耐熱性に優れた発光素子とすることができるだけでなく、電子と正孔の再結合が発光層内で行われることにより、発光素子の寿命の低下を抑制することができる。さらに、本発明の一態様である複素環化合物は、正孔輸送骨格が導入されることにより、立体的に嵩高い構造となり、膜にした場合に結晶化しにくく、発光素子に用いることで長寿命な素子を実現できる。その上、上記複素環化合物は、ジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環と正孔輸送骨格とが、ベンゼン環を介して結合している場合、直接結合する場合に比べてバンドギャップの低下及び三重項励起エネルギーの低下を防ぐことができ、発光素子に用いることで、電流効率が高い素子を実現できる。したがって本発明の一態様は、上述した複素環化合物を用いた発光素子も含むものとする。

## 【0034】

すなわち、本発明の別の構成は、一対の電極間にEL層を有する発光素子であって、EL層に含まれる発光層に本発明の一態様である複素環化合物を含むことを特徴とする。

## 【0035】

また、本発明の一態様は、発光素子を有する発光装置だけでなく、発光装置を有する電子機器および照明装置も範疇に含めるものである。従って、本明細書中における発光装置とは、画像表示デバイスもしくは光源（照明装置含む）を指す。また、発光装置にコネクター、例えばFPC（Flexible printed circuit）もしくはTAB（Tape Automated Bonding）テープもしくはTCP（Tape Carrier Package）が取り付けられたモジュール、TABテープやTCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、または発光素子にCOG（Chip On Glass）方式によりIC（集積回路）が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。

## 【発明の効果】

## 【0036】

本発明の一態様により、耐熱性に優れ、発光性の物質（蛍光を発する物質、または燐光を発する物質）に対するホスト材料として用いることができる新規の複素環化合物を提供することができる。また、本発明の一態様は、耐熱性に優れ、駆動電圧が低く、電流効率が高い、長寿命な発光素子を提供できる。また、本発明の一態様は、上述した発光素子を用いることにより、消費電力の低減された発光装置、電子機器、及び照明装置を提供できる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0037】

10

20

30

40

50

- 【図1】発光素子の構造について説明する図。
- 【図2】発光素子の構造について説明する図。
- 【図3】発光素子の構造について説明する図。
- 【図4】発光装置について説明する図。
- 【図5】発光装置について説明する図。
- 【図6】電子機器について説明する図。
- 【図7】電子機器について説明する図。
- 【図8】照明器具について説明する図。
- 【図9】構造式(418)に示す複素環化合物の<sup>1</sup>H-NMRチャート。
- 【図10】構造式(400)に示す複素環化合物の<sup>1</sup>H-NMRチャート。 10
- 【図11】発光素子について説明する図。
- 【図12】発光素子1の電流密度-輝度特性を示す図。
- 【図13】発光素子1の電圧-輝度特性を示す図。
- 【図14】発光素子1の輝度-電流効率特性を示す図。
- 【図15】発光素子1の発光スペクトルを示す図。
- 【図16】発光素子2および比較発光素子の80 保存試験の結果を示す図。
- 【図17】発光素子3および比較発光素子の80 保存試験の結果を示す図。
- 【図18】80 保存試験の結果を示す図。
- 【図19】構造式(418)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。 20
- 【図20】構造式(400)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。
- 【図21】構造式(103)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。
- 【図22】構造式(113)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。
- 【図23】発光素子4の電流密度-輝度特性を示す図。
- 【図24】発光素子4の電圧-輝度特性を示す図。
- 【図25】発光素子4の輝度-電流効率特性を示す図。
- 【図26】発光素子4の発光スペクトルを示す図。
- 【図27】発光素子4の100 保存試験の結果を示す図。
- 【図28】100 保存試験の結果を示す図。
- 【図29】構造式(131)に示す複素環化合物の<sup>1</sup>H-NMRチャート。
- 【図30】構造式(131)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。 30
- 【図31】構造式(400)に示す複素環化合物のTOF-SIMS(正イオン)測定結果を示す図。
- 【図32】構造式(103)に示す複素環化合物のTOF-SIMS(負イオン)測定結果を示す図。
- 【図33】構造式(113)に示す複素環化合物のTOF-SIMS(正イオン)測定結果を示す図。
- 【図34】構造式(203)に示す複素環化合物の<sup>1</sup>H-NMRチャート。
- 【図35】構造式(203)に示す複素環化合物のLC-MS測定結果を示す図。
- 【発明を実施するための形態】
- 【0038】 40
- 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。
- 【0039】
- (実施の形態1)
- 本実施の形態では、本発明の一態様である発光素子について説明する。
- 【0040】
- 本発明の一態様である発光素子は、1つのジベンゾ[f, h]キノキサリン環、1つの正孔輸送性骨格を有する環、およびベンゼン環を含み、ベンゼン環の数が2個以上8個以 50

下である複素環化合物を含む発光素子である。なお、ベンゼン環の数を上記とすることでき、化合物の耐熱性を高めることができるので好ましい。このような耐熱性の観点から、本発明の一態様である発光素子は、1つのジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環、および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含み、分子量が564以上1000以下である複素環化合物を含む発光素子であることが好ましい。なお、このような効果は特に、発光素子の発光層に該複素環化合物を用いた場合に顕著に表れる。

## 【0041】

また、化合物の耐熱性をさらに高める観点から、本発明の一態様である発光素子は、1つのジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環、1つの正孔輸送性骨格を有する環、およびベンゼン環を含み、ベンゼン環の数が4個以上8個以下である複素環化合物を含む発光素子であってもよい。このような耐熱性の観点から、本発明の一態様である発光素子は、1つのジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環、および1つの正孔輸送性骨格を有する環を含み、分子量が716以上1000以下である複素環化合物を含む発光素子であることが、より好ましい。

## 【0042】

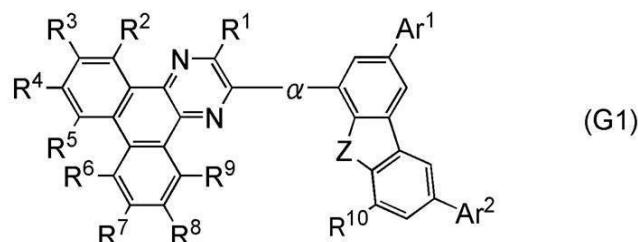
また、上記発光素子に含まれる複素環化合物は、ビフェニル基またはビフェニルジイル基を有し、正孔輸送性骨格を有する環としては、カルバゾール環、ジベンゾチオフェン環、またはジベンゾフラン環のいずれかである。

## 【0043】

また、本発明の一態様は、一般式(G1)で表される複素環化合物である。

## 【0044】

## 【化5】



20

30

## 【0045】

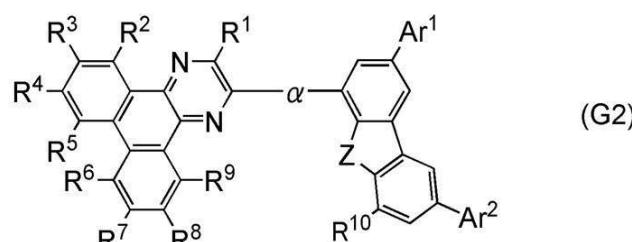
一般式(G1)において、*α*は置換または無置換のフェニレン基を表し、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>は置換または無置換のビフェニル基を表し、R<sup>1</sup>～R<sup>10</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基、のいずれかを表し、Zは酸素または硫黄を表す。

## 【0046】

また、本発明の一態様は、一般式(G2)で表される複素環化合物である。

## 【0047】

## 【化6】



40

## 【0048】

一般式(G2)において、*α*は置換または無置換のビフェニルジイル基を表し、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>は置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、のいずれ

50

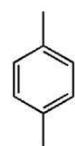
かを表し、 $R^1 \sim R^{10}$  は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 の置換もしくは無置換のアリール基、のいずれかを表し、Z は酸素または硫黄を表す。

## 【0049】

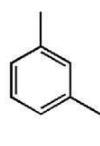
一般式 (G1) または (G2) 中における の具体的な構造としては、例えば、構造式 (1-1) ~ 構造式 (1-9) に示す置換基が挙げられる。

## 【0050】

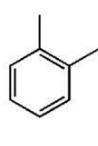
## 【化7】



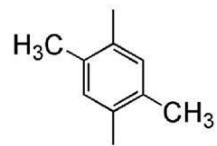
(1-1)



(1-2)

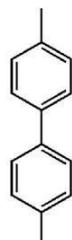


(1-3)

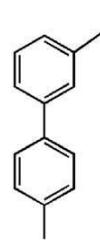


(1-4)

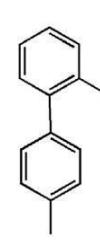
10



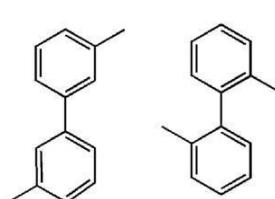
(1-5)



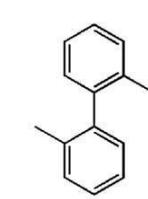
(1-6)



(1-7)



(1-8)



(1-9)

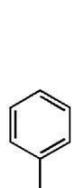
20

## 【0051】

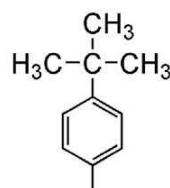
一般式 (G1) または (G2) 中における  $A_{r1} \sim A_{r2}$  の具体的な構造としては、例えば、構造式 (2-10) ~ 構造式 (2-16) に示す置換基が挙げられる。

## 【0052】

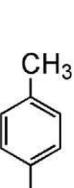
## 【化8】



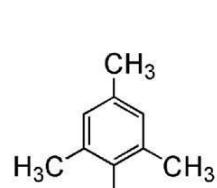
(2-10)



(2-11)

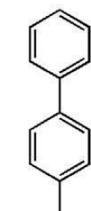


(2-12)

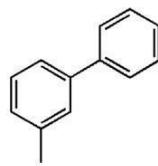


(2-13)

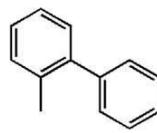
30



(2-14)



(2-15)



(2-16)

40

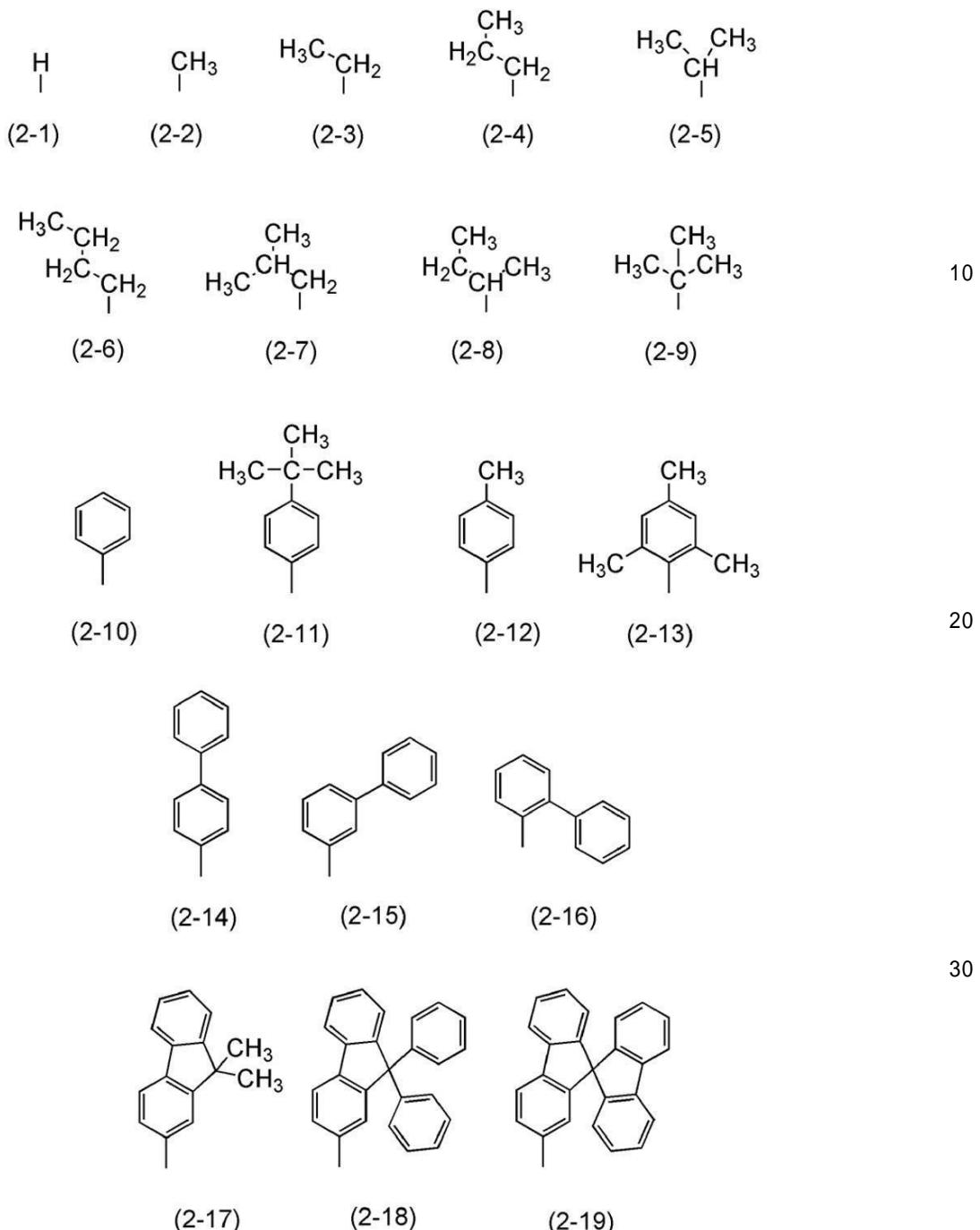
## 【0053】

一般式 (G1) または (G2) 中における  $R^1 \sim R^{10}$  の具体的な構造としては、例えば、構造式 (2-1) ~ 構造式 (2-19) に示す置換基が挙げられる。

## 【0054】

50

## 【化9】

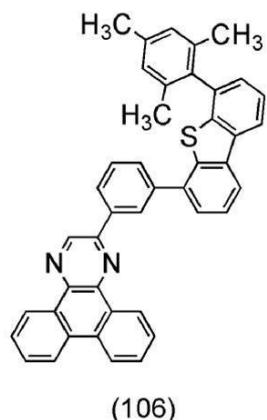
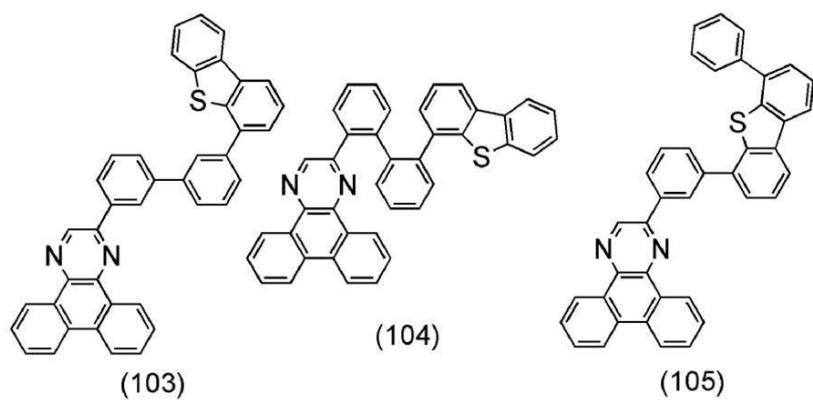
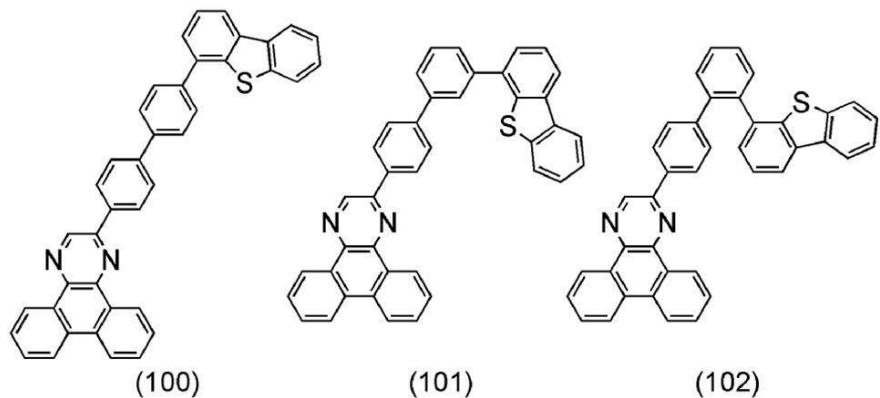


## 【0055】

本発明の一態様に用いることができる複素環化合物の具体例としては、構造式(100)～構造式(131)、構造式(200)～構造式(230)、構造式(300)～構造式(329)、構造式(400)～構造式(436)及び構造式(500)～構造式(536)に示される複素環化合物を挙げることができる。なお、一般式(G1)で表される化合物の具体例としては、構造式(400)～(417)および(500)～(517)を上げることができる。また、一般式(G2)で表される化合物の具体例としては、構造式(418)～(436)および(518)～(536)を上げることができる。但し、本発明はこれらに限定されない。

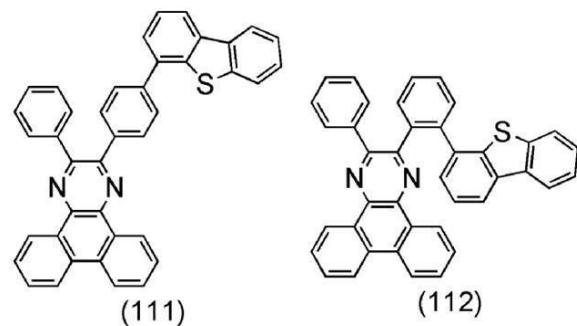
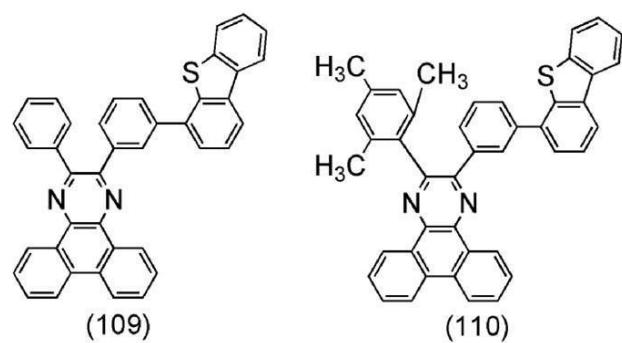
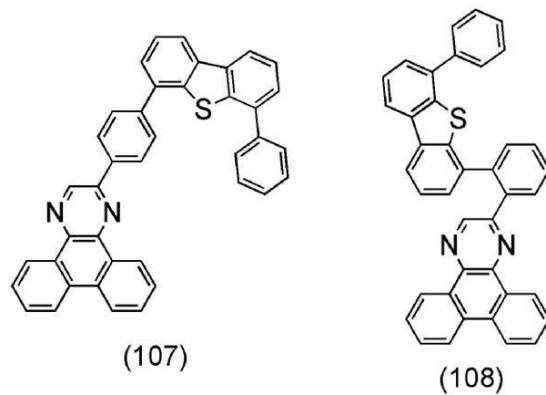
## 【0056】

【化 1 0】



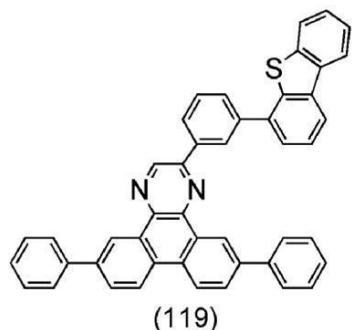
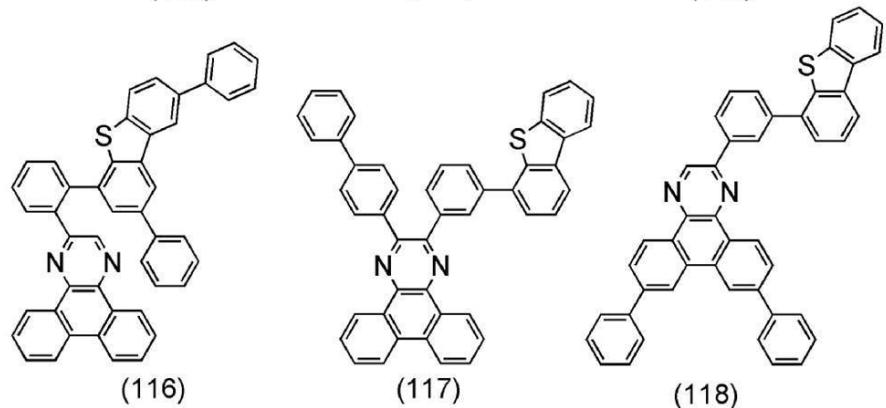
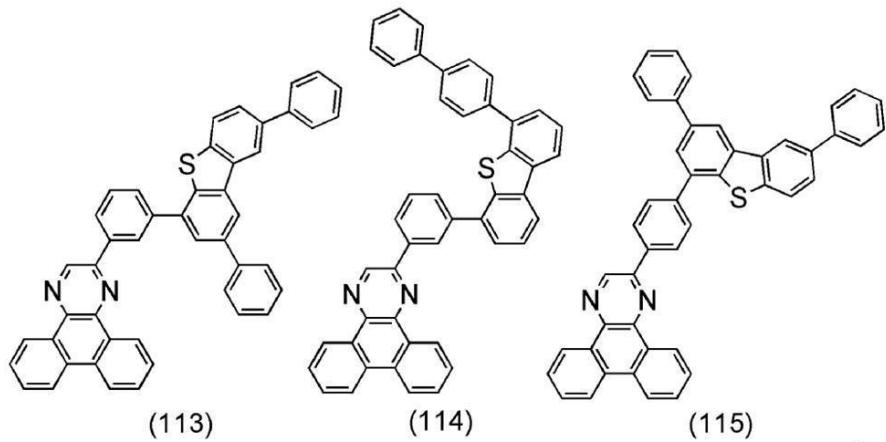
【 0 0 5 7 】

【化 11】



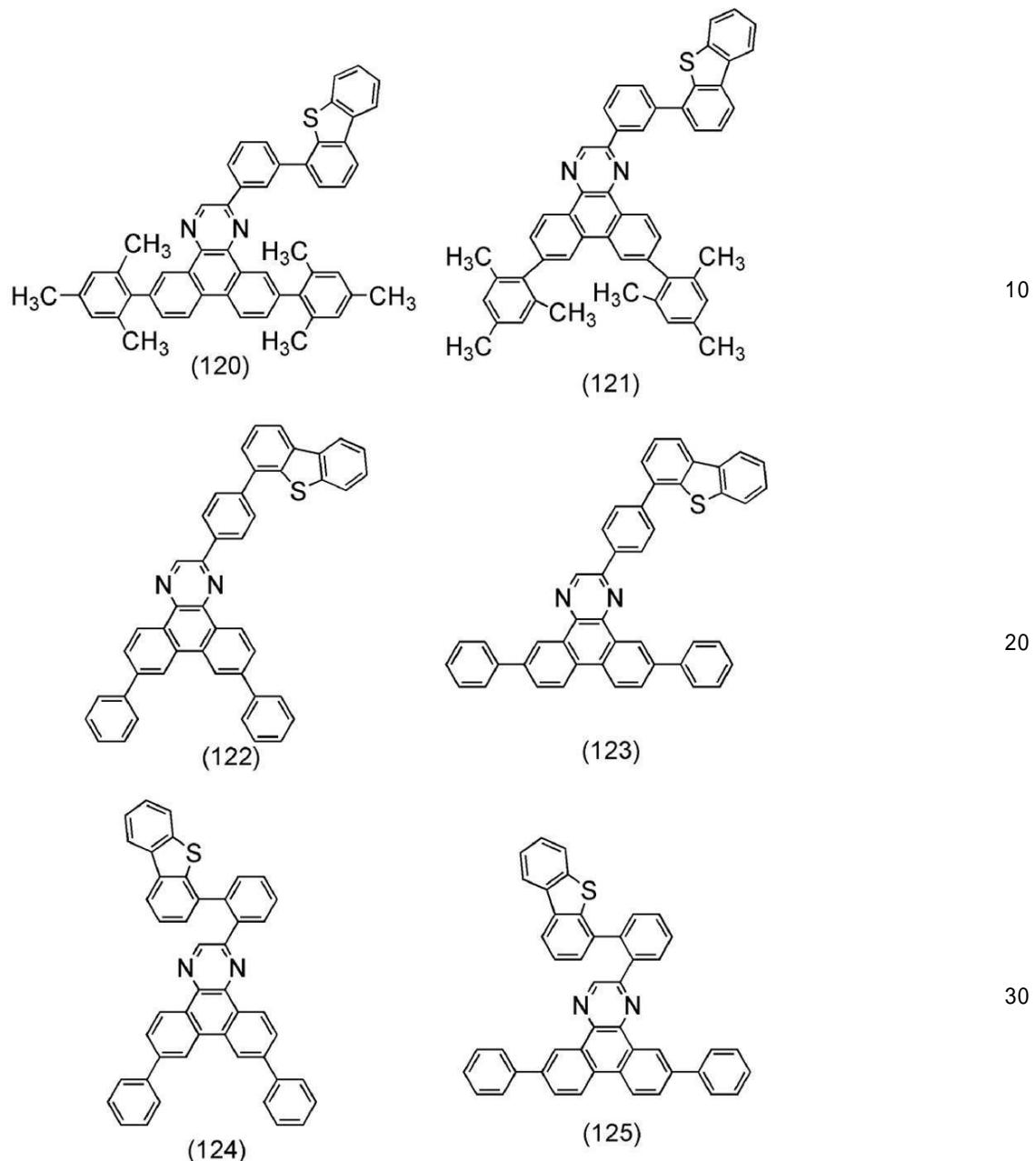
【0058】

【化 1 2】



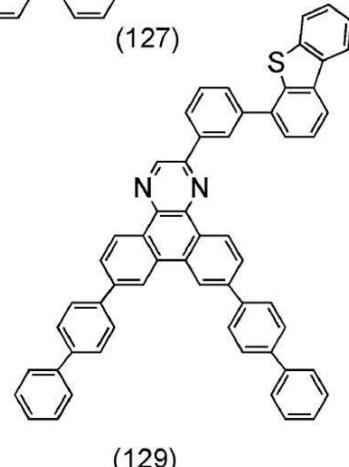
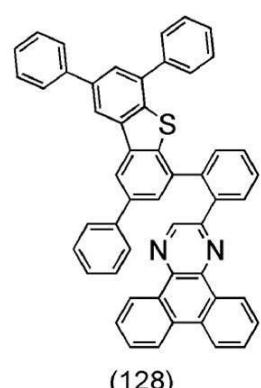
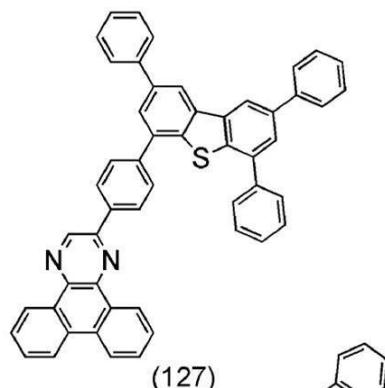
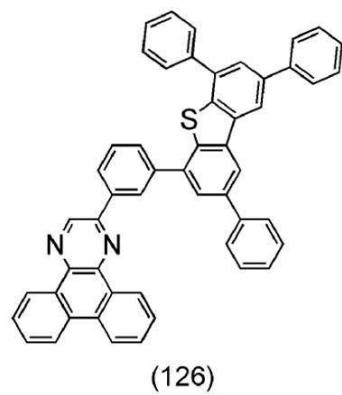
【 0 0 5 9 】

【化 1 3】



【0060】

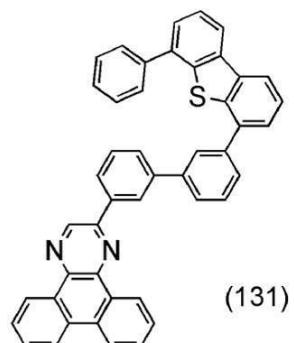
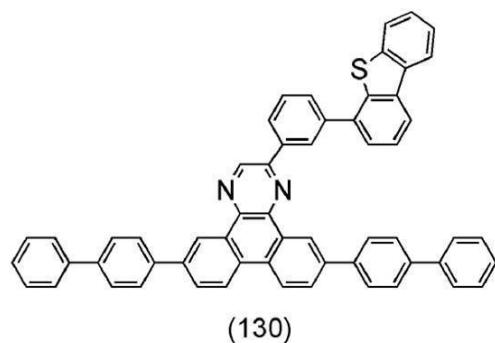
【化 14】



10

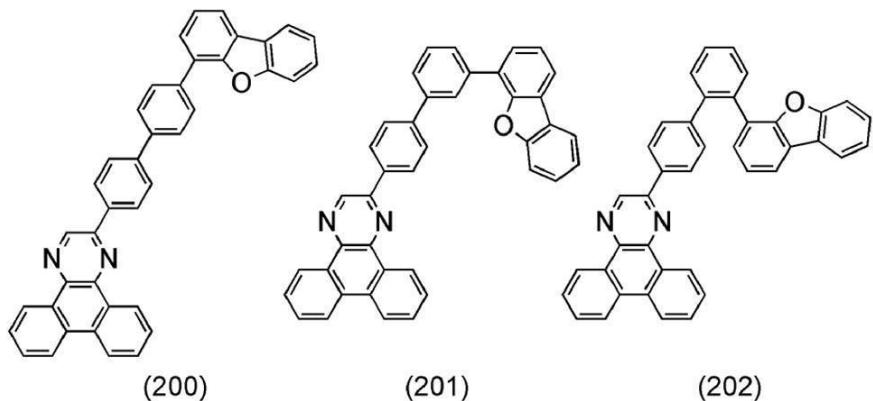
20

30

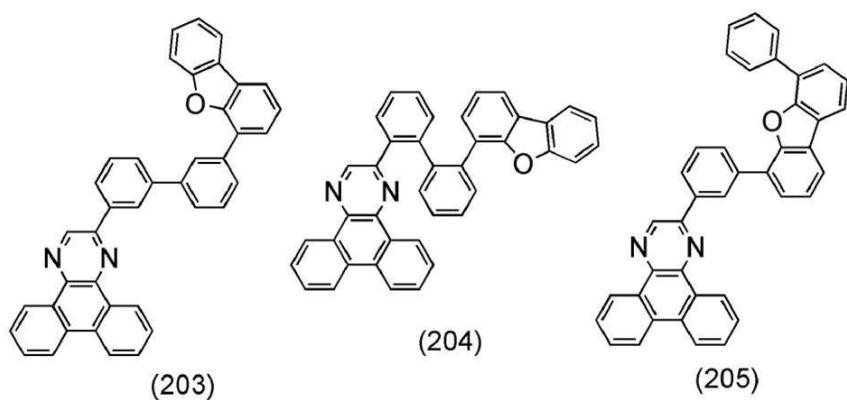


【0061】

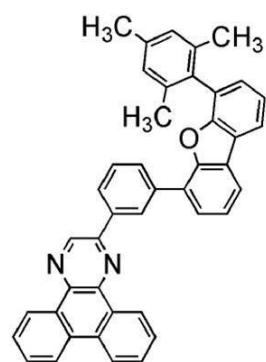
## 【化 1 5 】



10



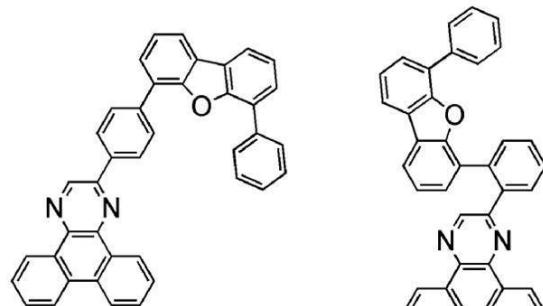
20



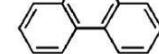
30

【 0 0 6 2 】

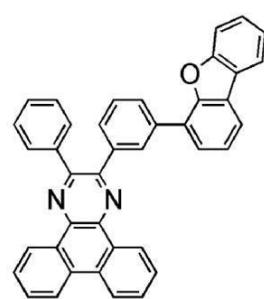
## 【化 1 6】



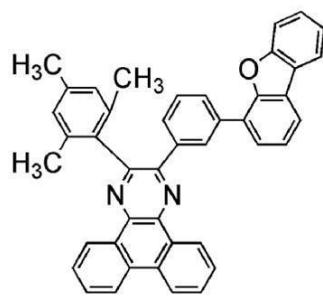
(207)



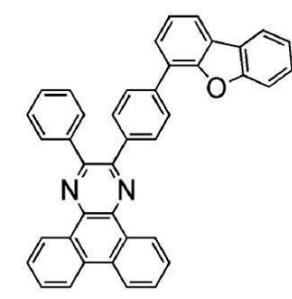
10



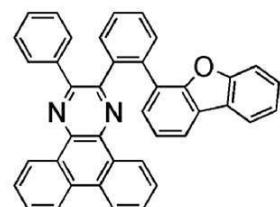
(209)



20



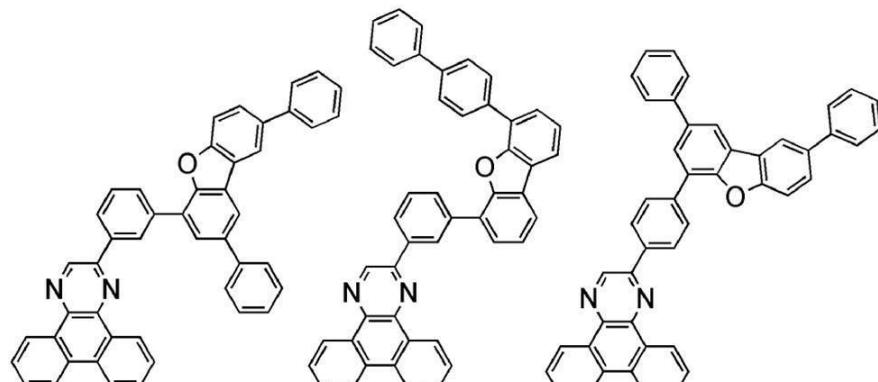
(211)



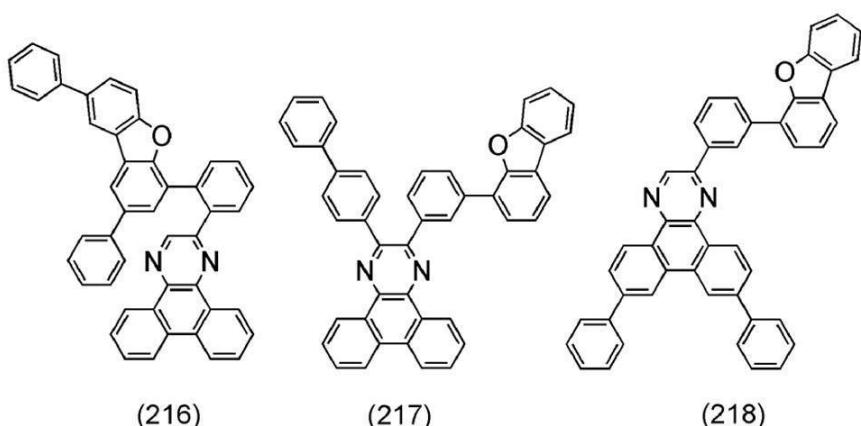
30

【 0 0 6 3 】

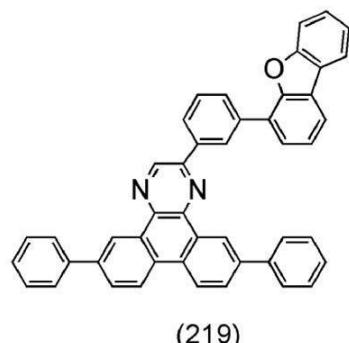
【化 17】



10



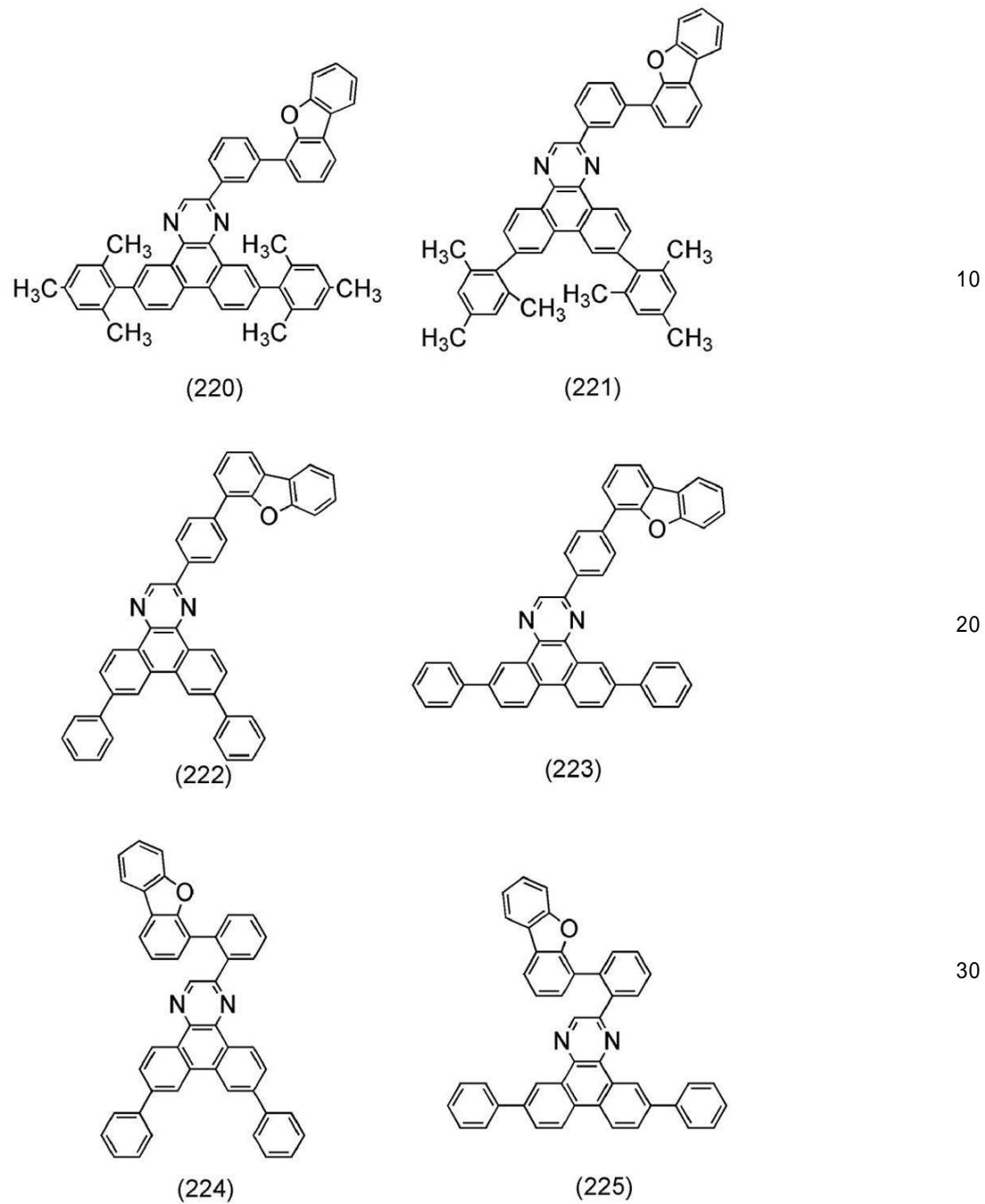
20



30

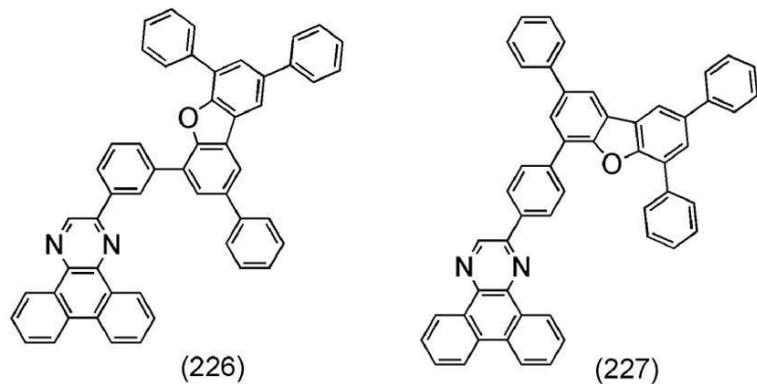
【0064】

【化 18】

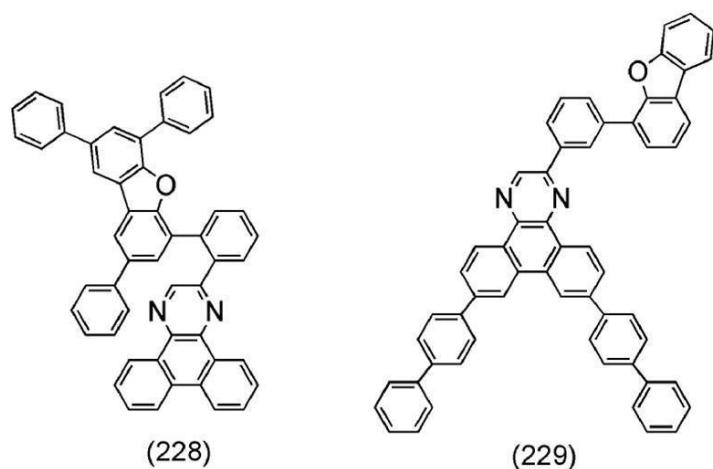


【 0 0 6 5 】

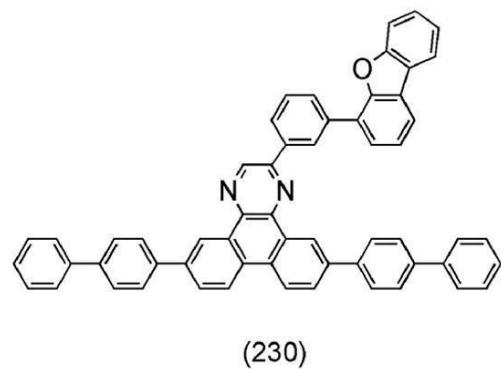
【化19】



10



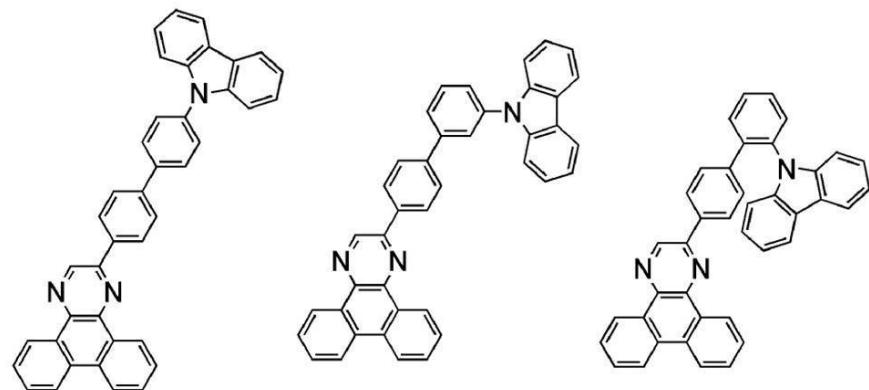
20



30

【0066】

【化 2 0】

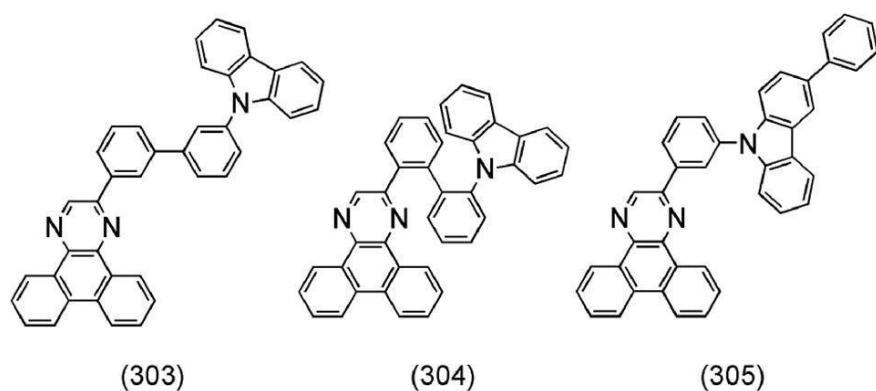


(300)

(301)

(302)

10

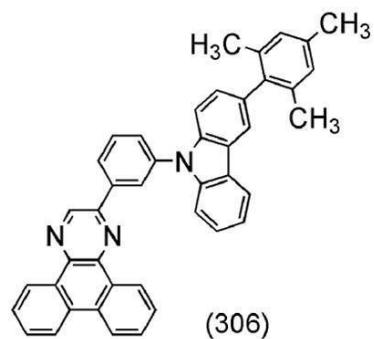


(303)

(304)

(305)

20

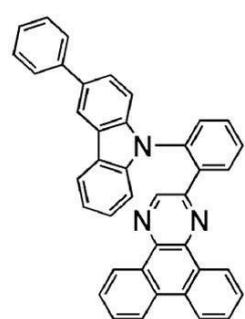


(306)

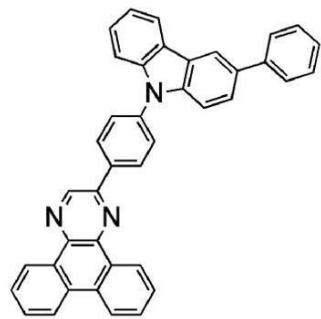
30

【 0 0 6 7 】

【化 21】

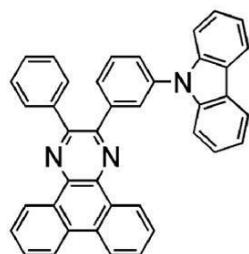


(307)

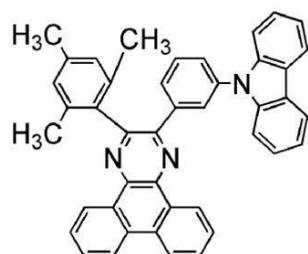


(308)

10

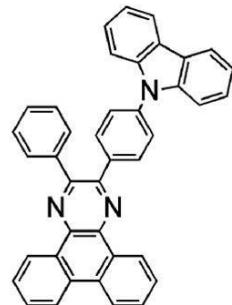


(309)

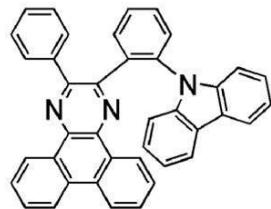


(310)

20



(311)

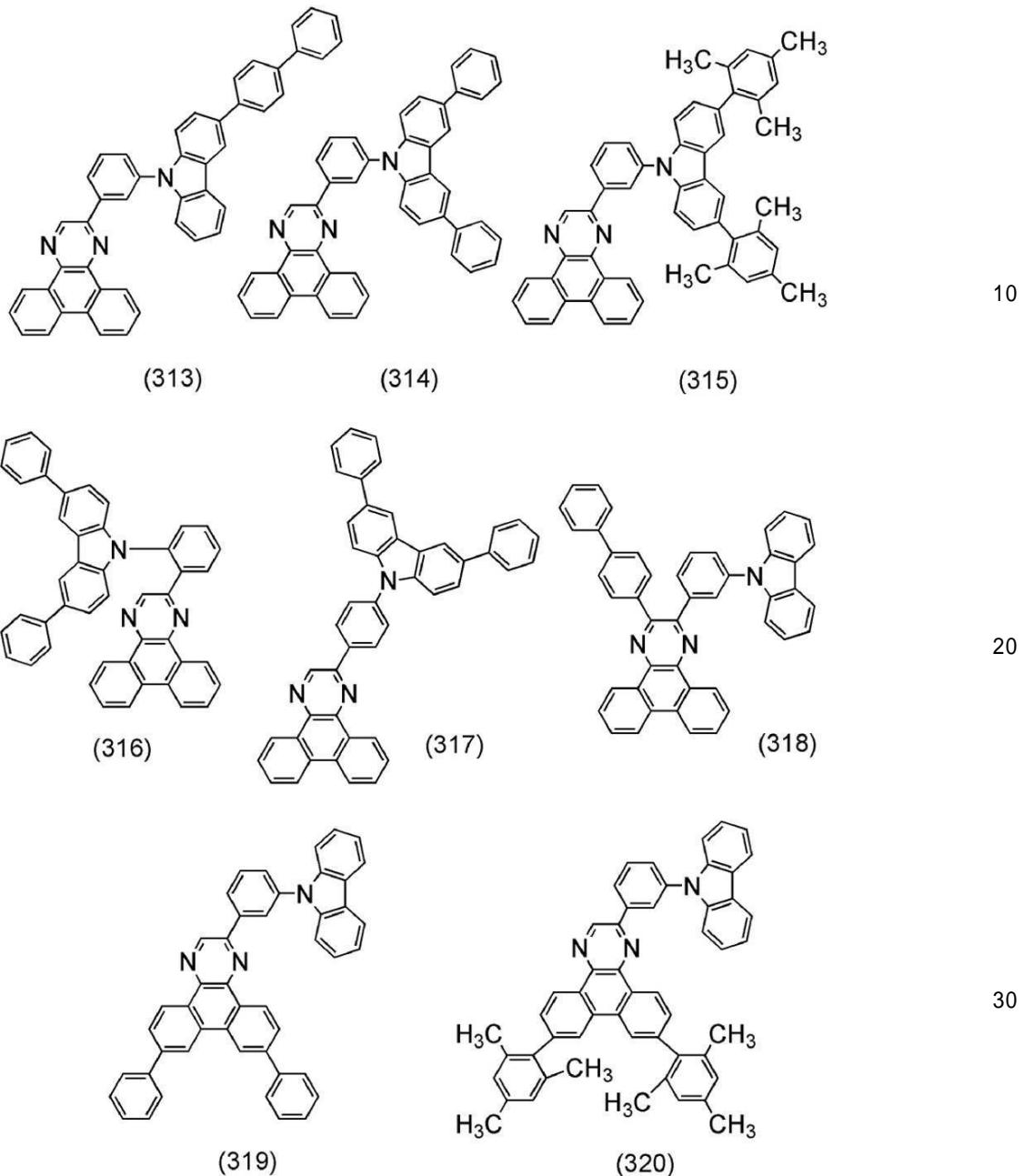


(312)

30

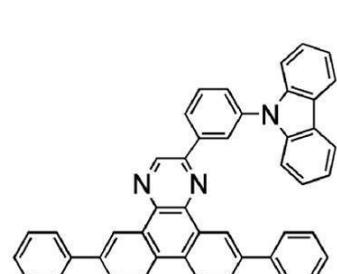
【 0 0 6 8 】

【化 2 2】

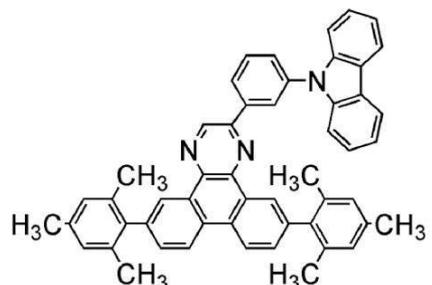


【 0 0 6 9 】

【化 2 3】

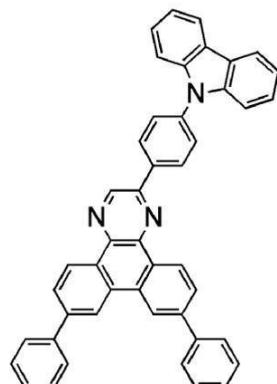


(321)

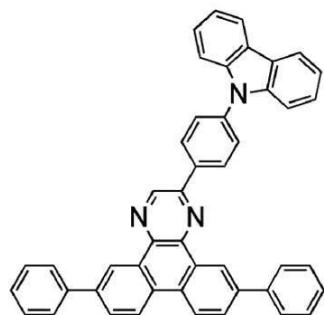


(322)

10

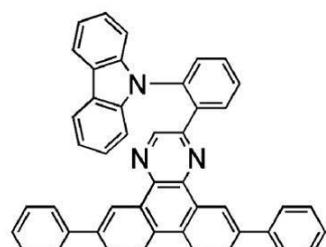


(323)

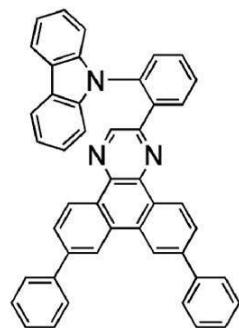


(324)

20



(325)

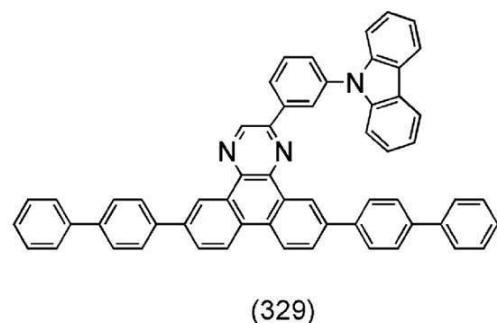
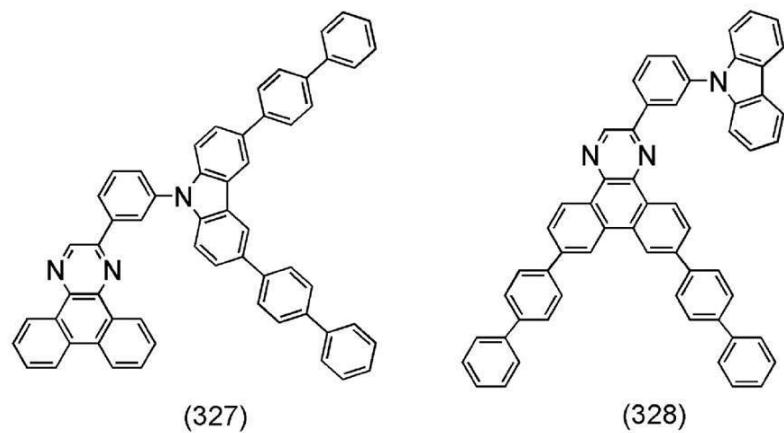


(326)

30

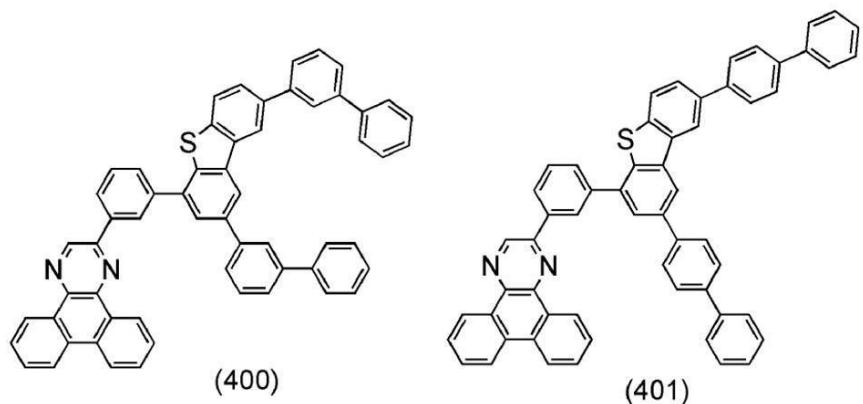
【 0 0 7 0 】

【化 24】

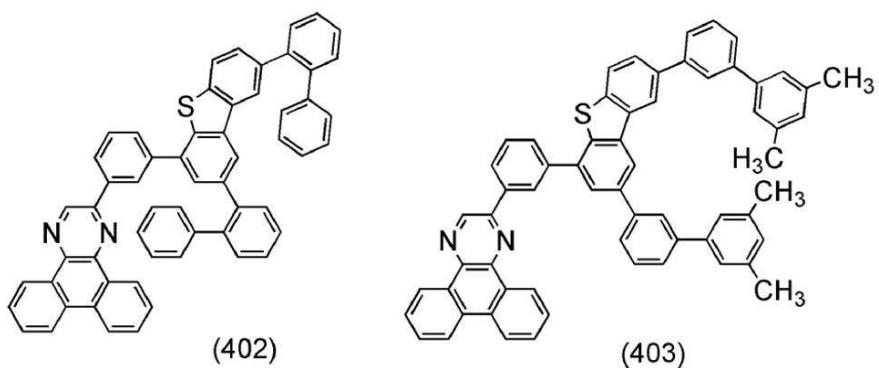


【0071】

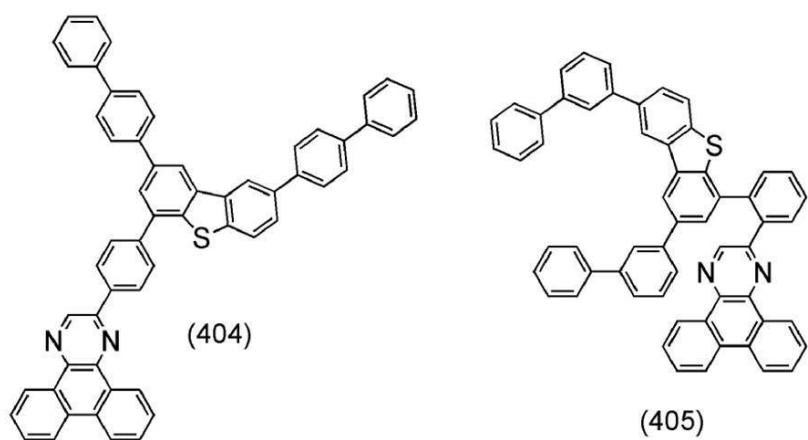
【化 25】



10



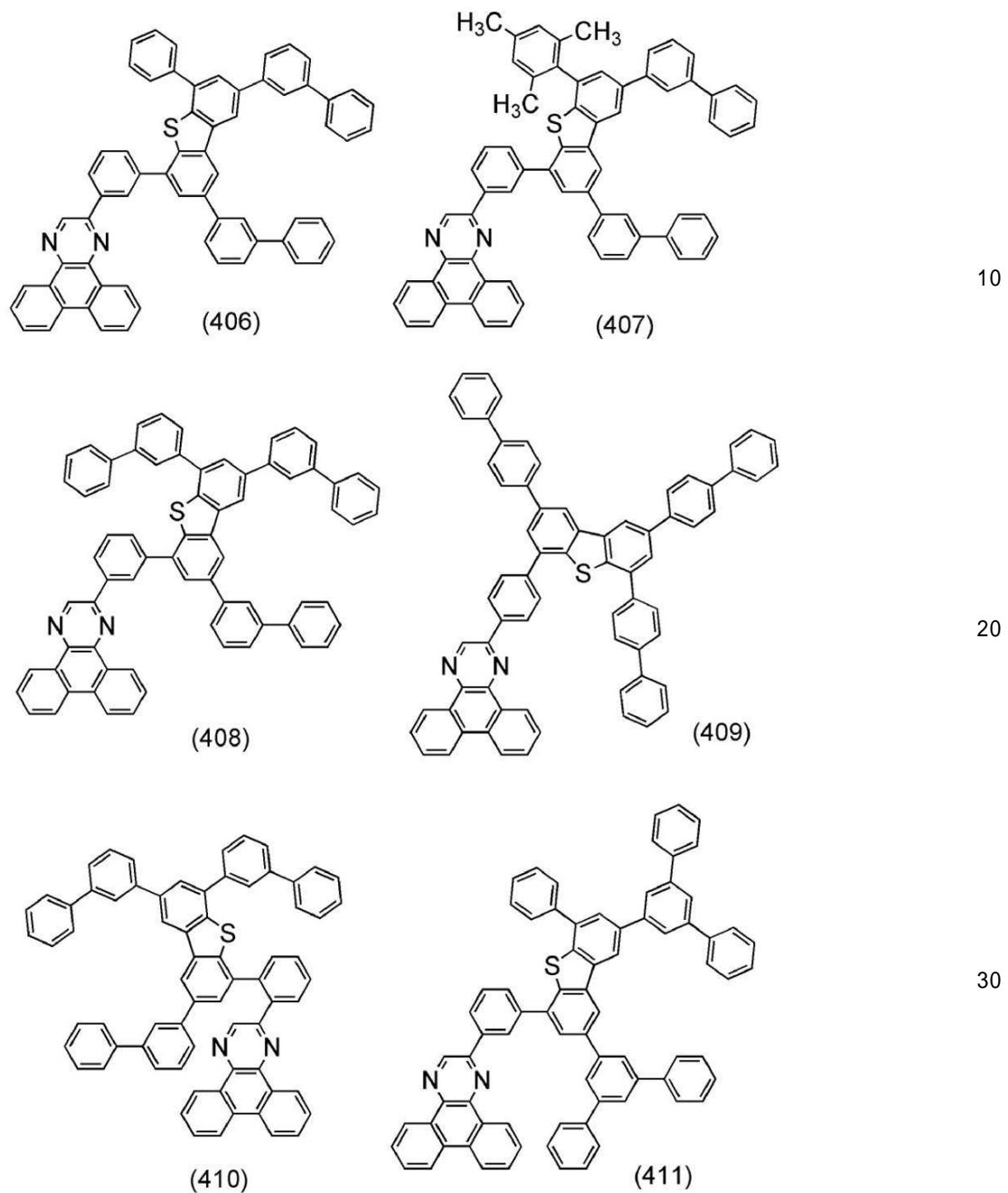
20



30

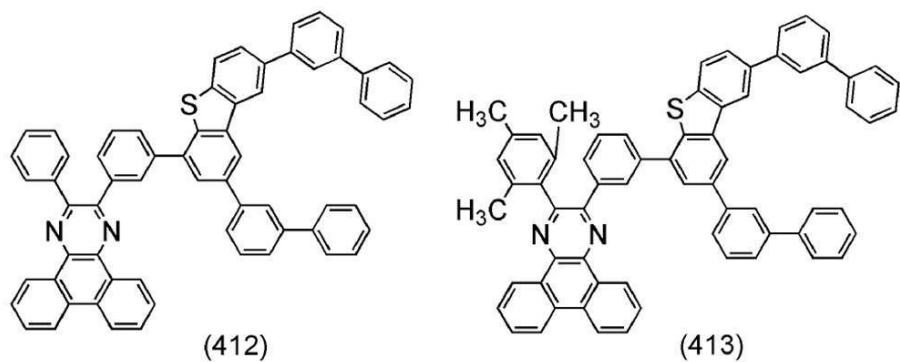
【 0 0 7 2 】

【化 2 6】

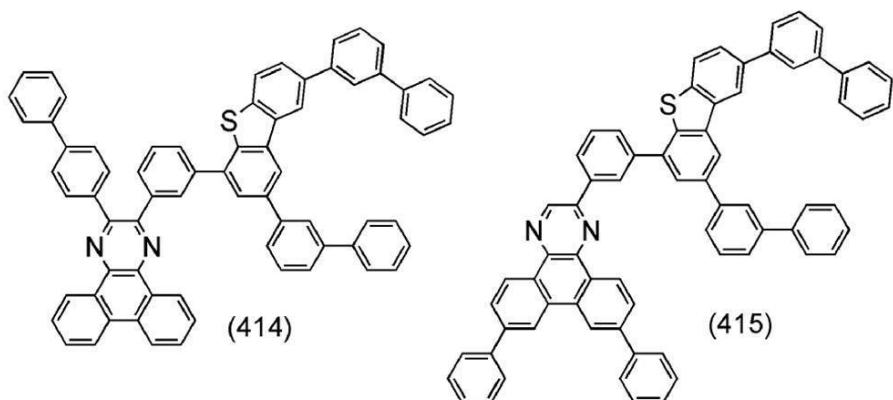


【 0 0 7 3 】

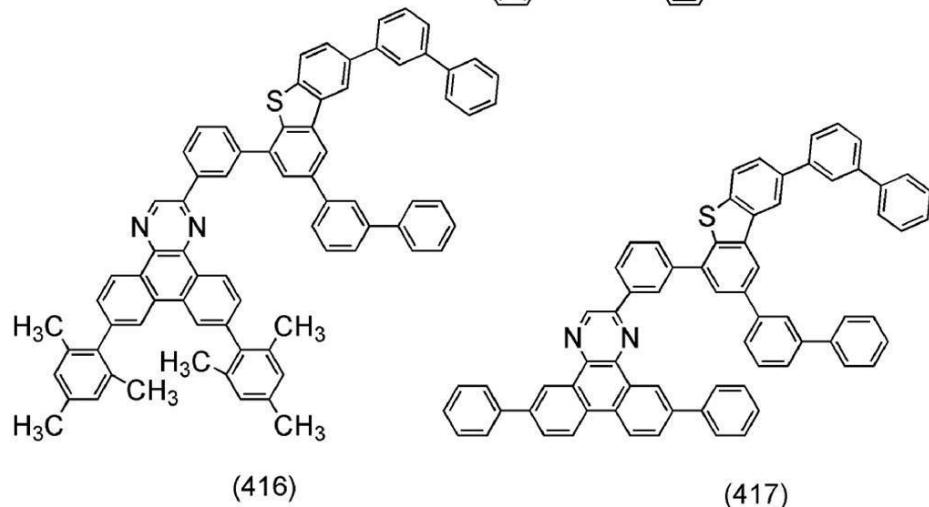
【化 27】



10



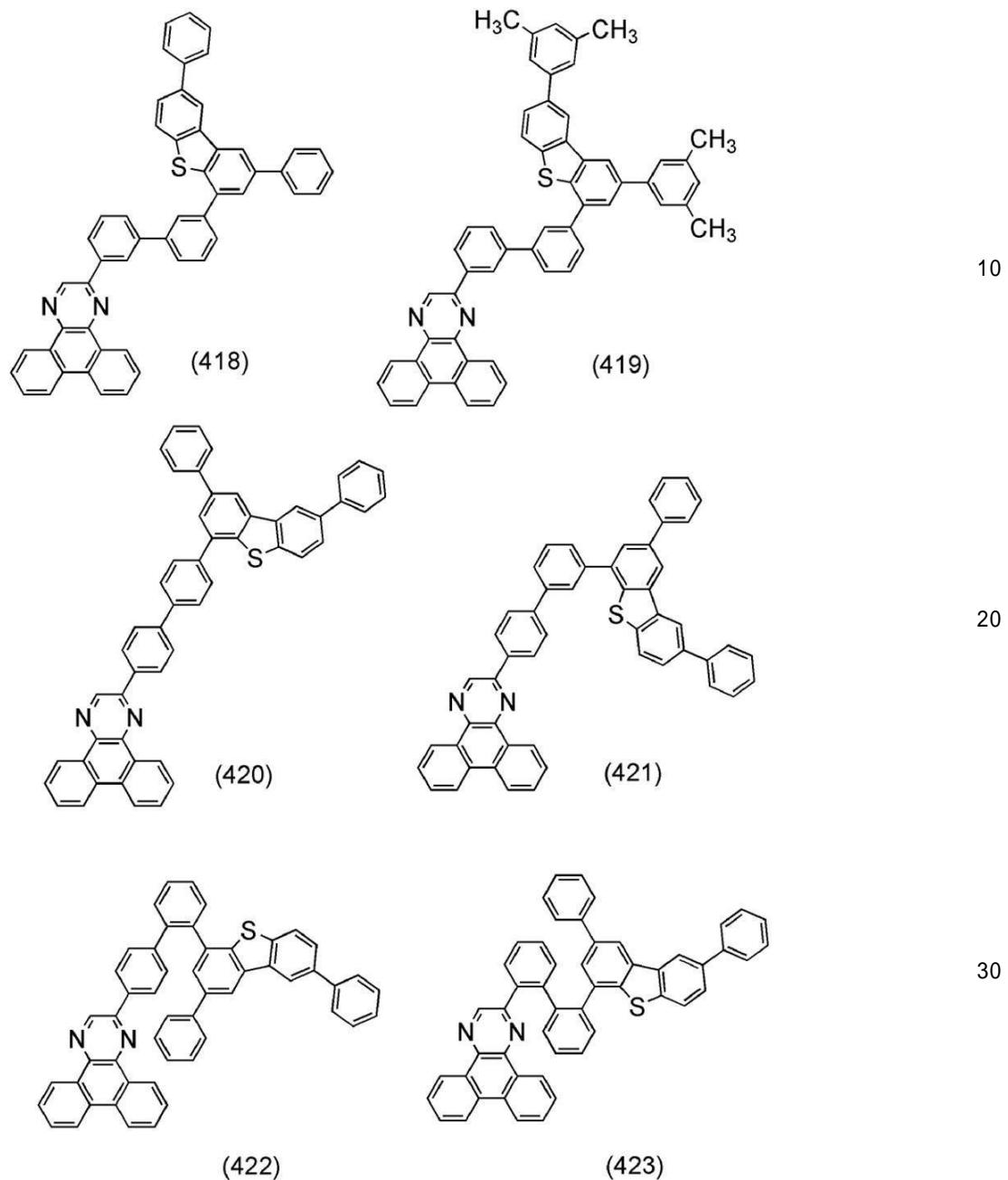
20



30

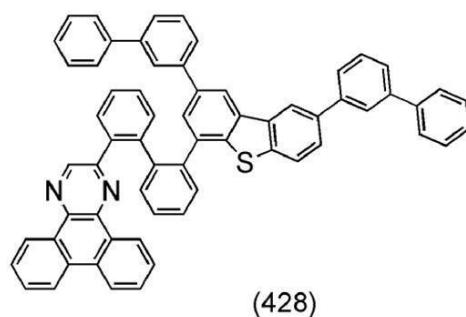
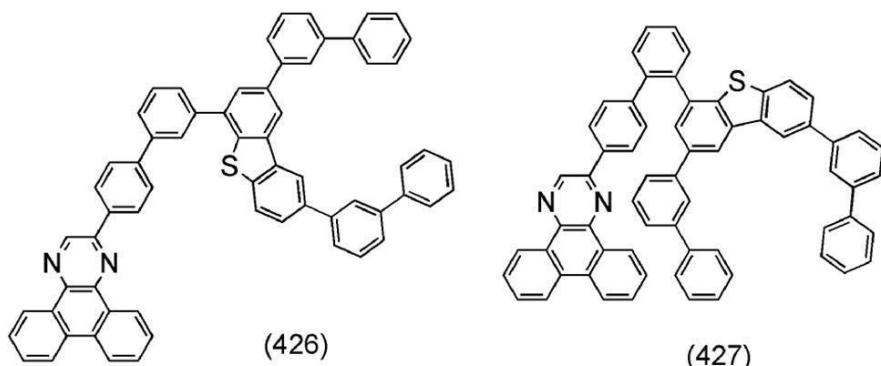
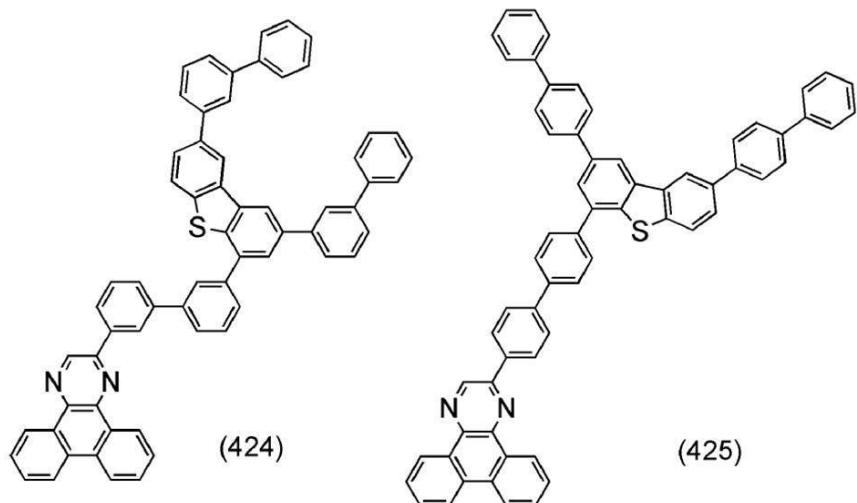
【 0 0 7 4 】

【化 2 8】



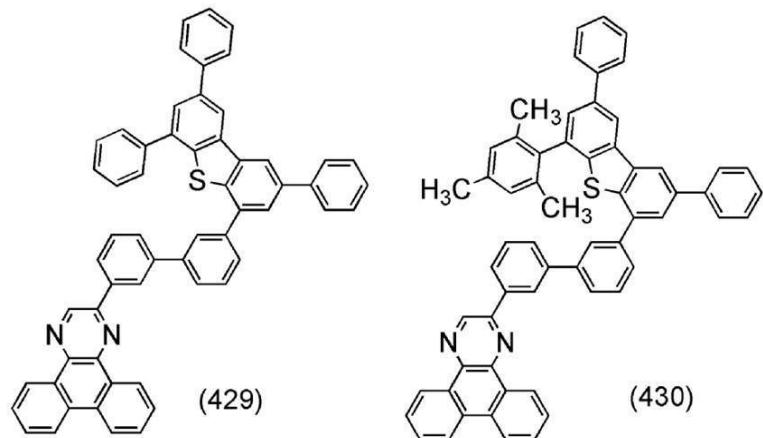
【 0 0 7 5 】

【化 29】

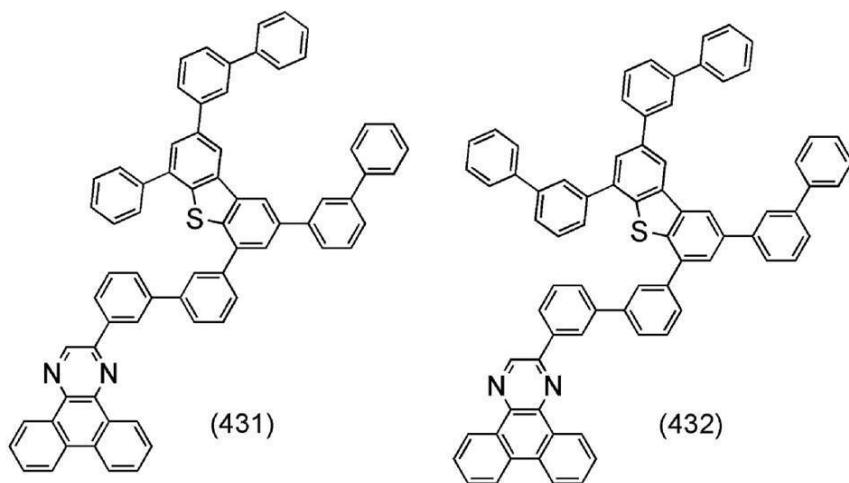


【0076】

【化 3 0 】



10

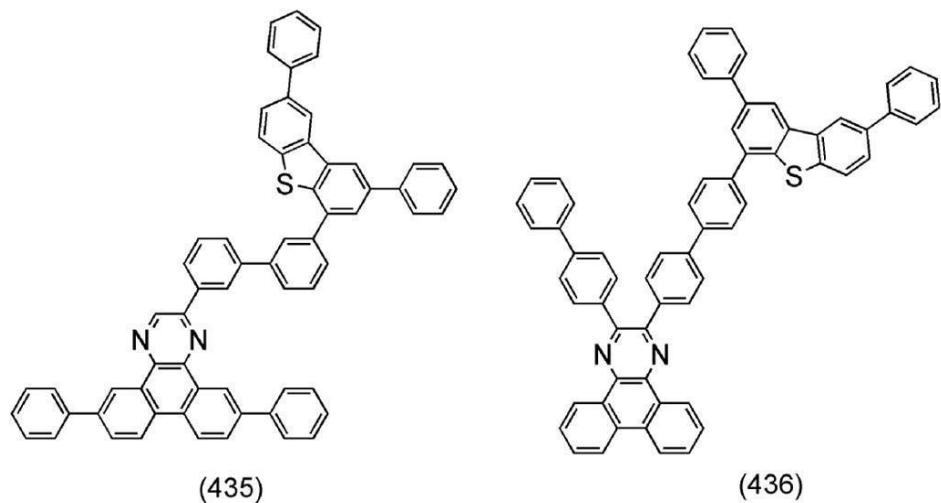
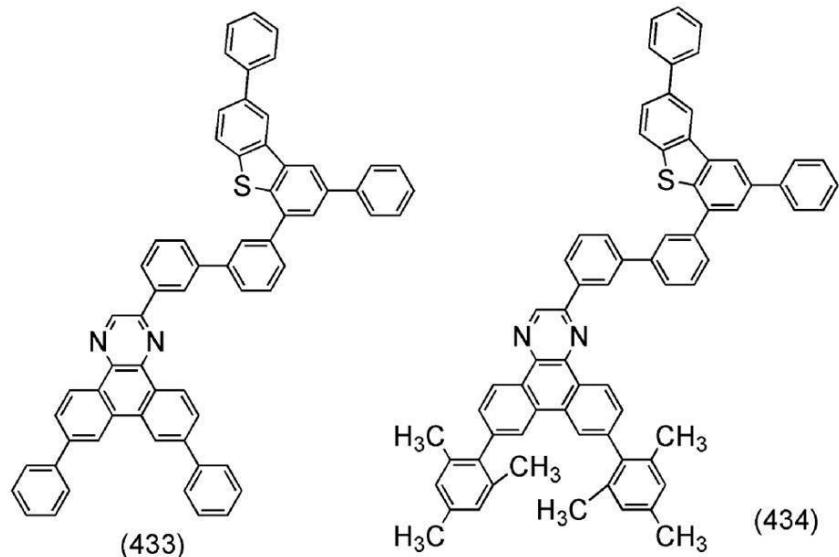


20

【 0 0 7 7 】

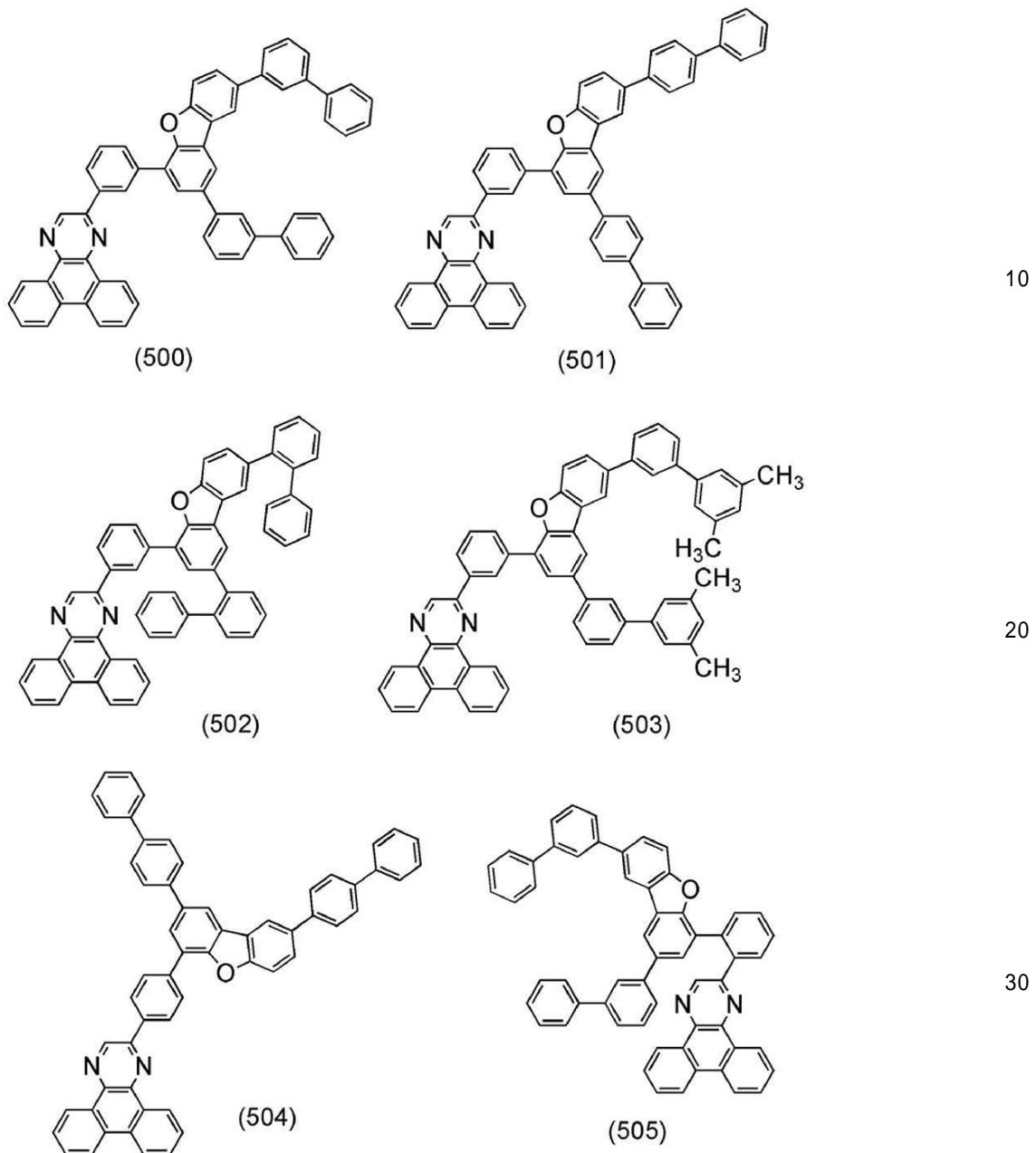
30

【化 3 1】



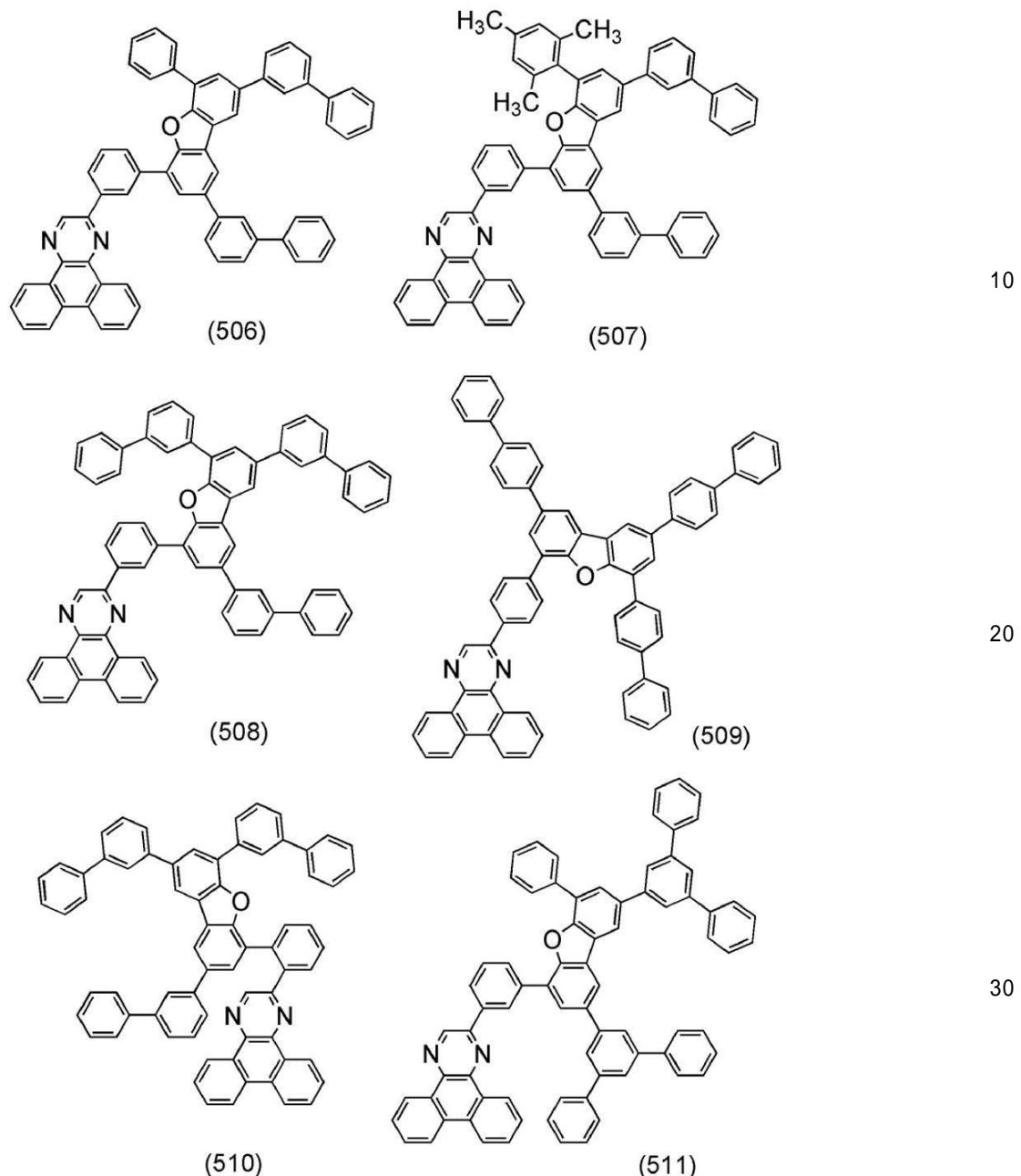
【 0 0 7 8 】

【化 3 2】



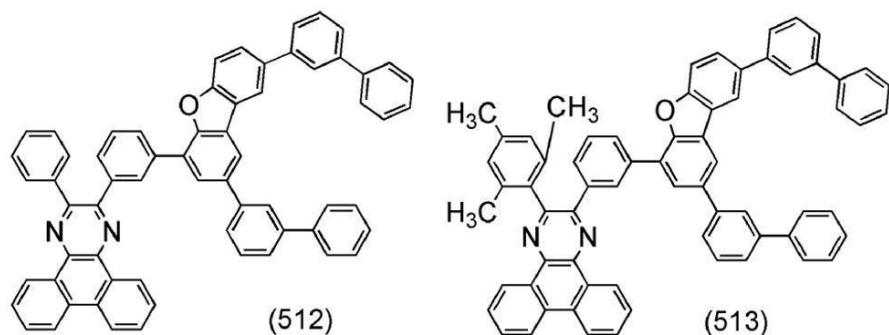
【0079】

【化 3 3】

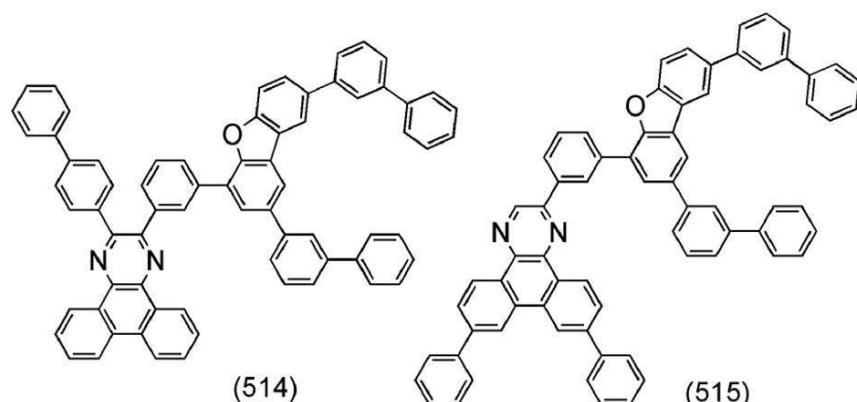


【0080】

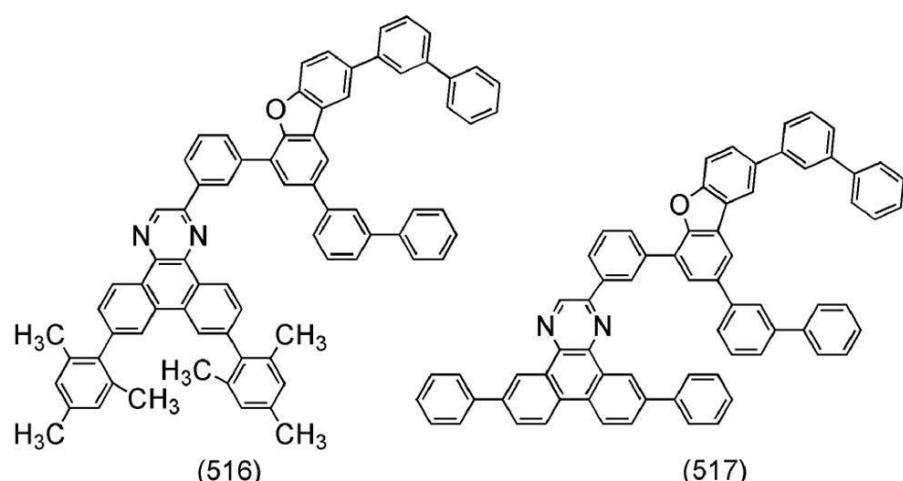
【化 3 4】



10



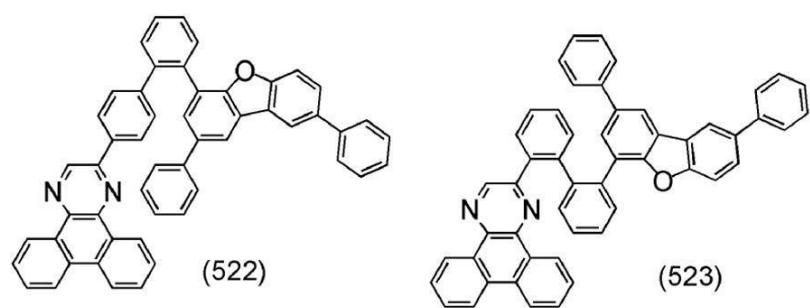
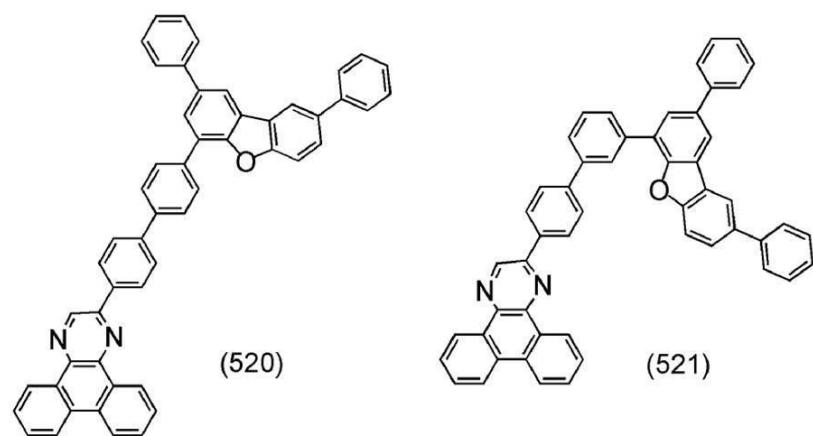
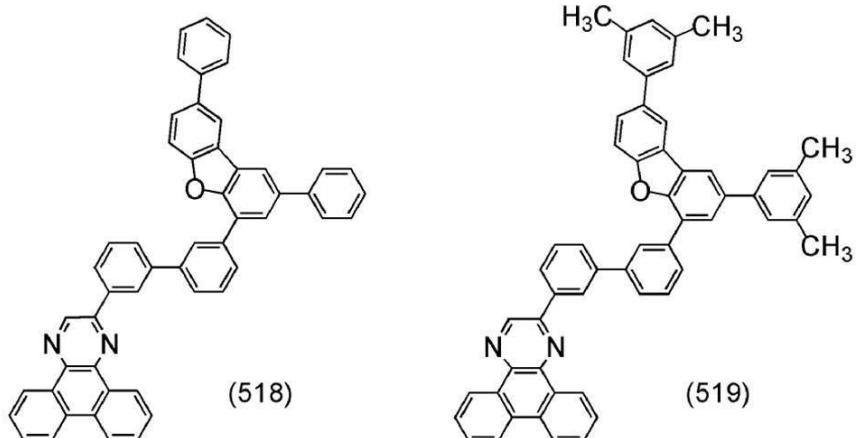
20



30

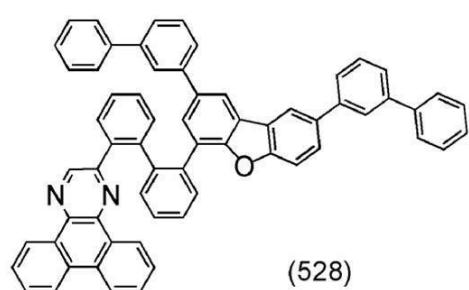
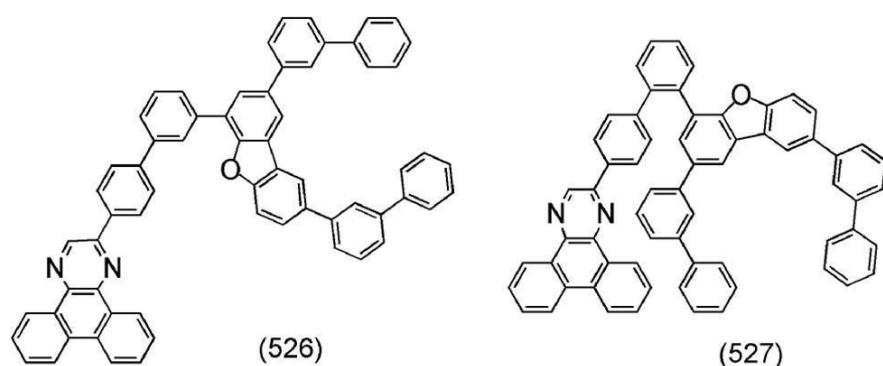
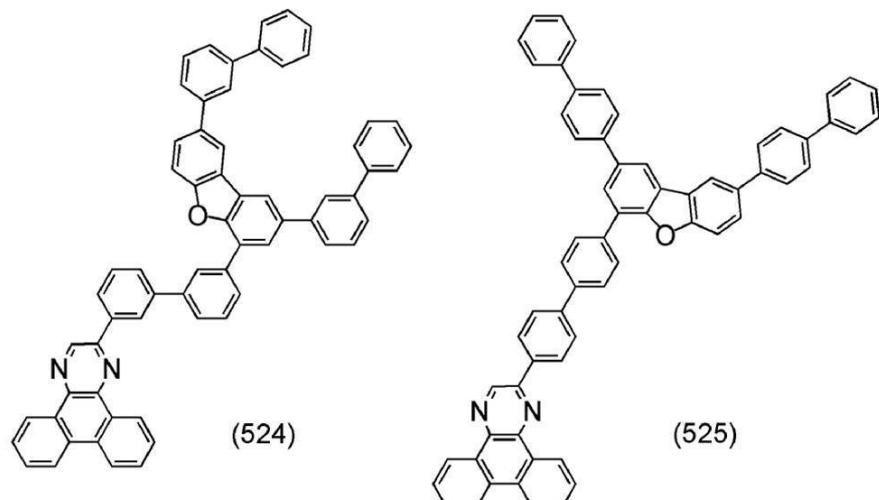
【 0 0 8 1 】

【化 3 5】



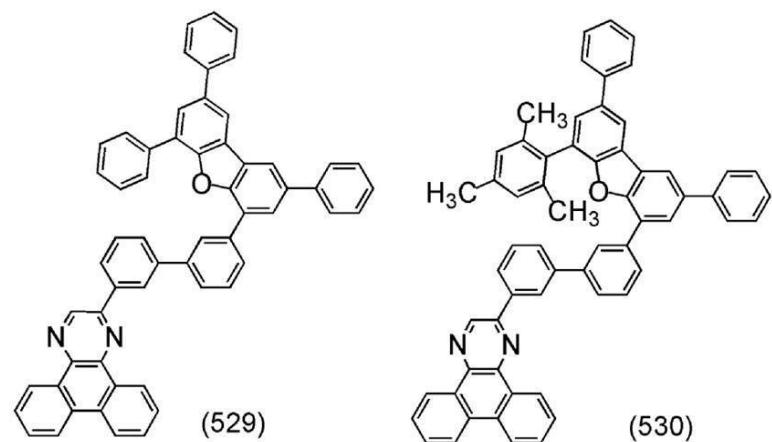
【 0 0 8 2 】

【化 3 6】

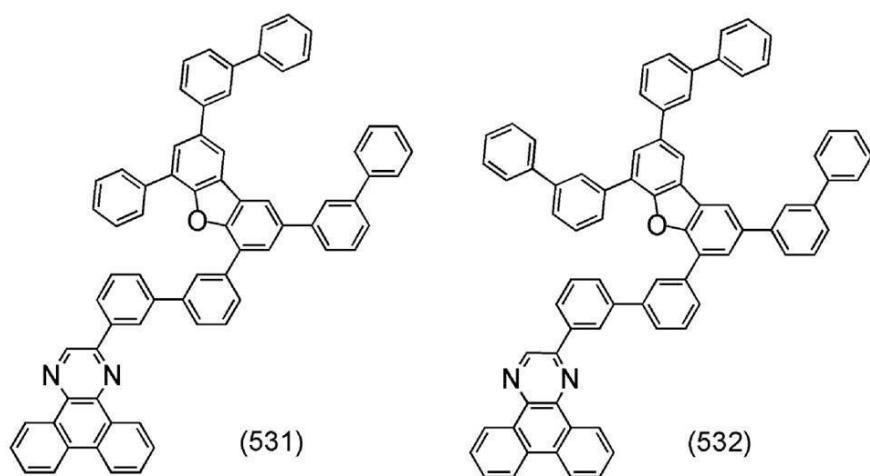


【0083】

【化 3 7】



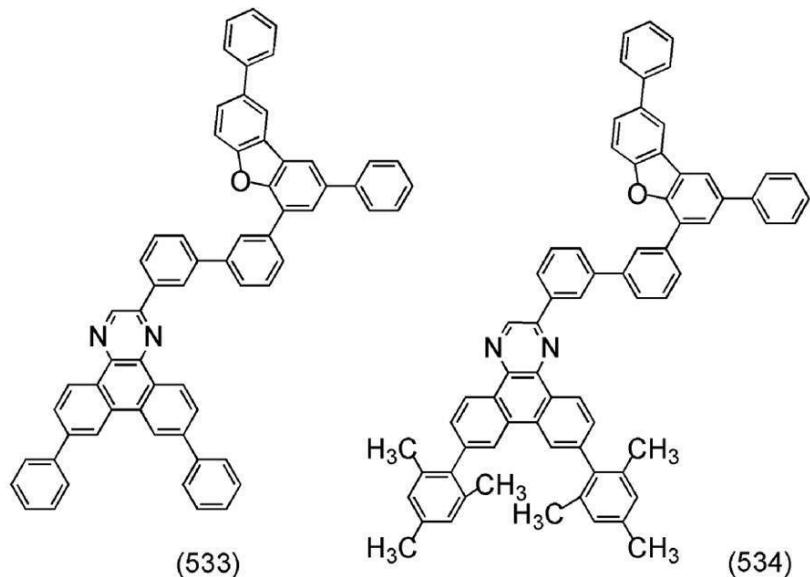
10



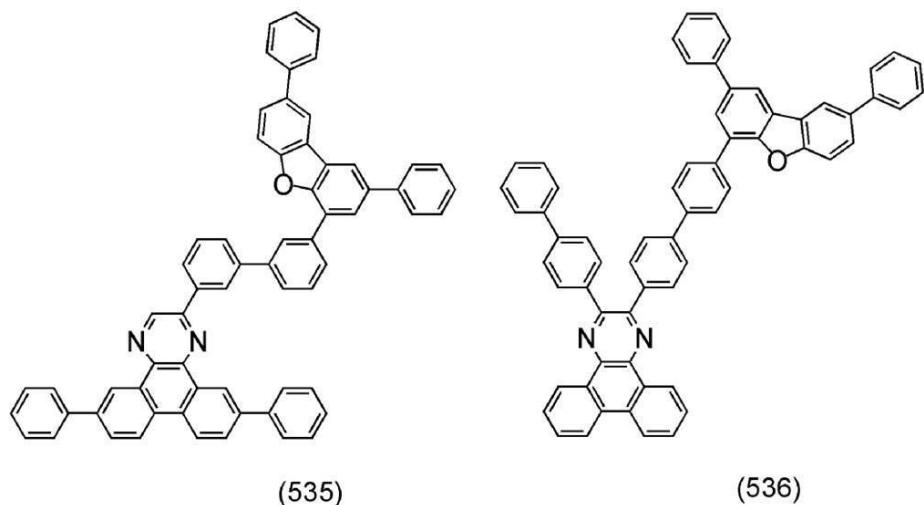
20

【 0 0 8 4 】

## 【化 3 8】



10



20

30

## 【 0 0 8 5 】

本発明の一態様の複素環化合物の合成方法としては種々の反応を適用することができる。例えば、以下に示す合成反応を行うことによって、一般式 (G1) または (G2) で表される本発明の一態様の複素環化合物を合成することができる。なお、本発明の一態様である複素環化合物の合成方法は、以下の合成方法に限定されない。

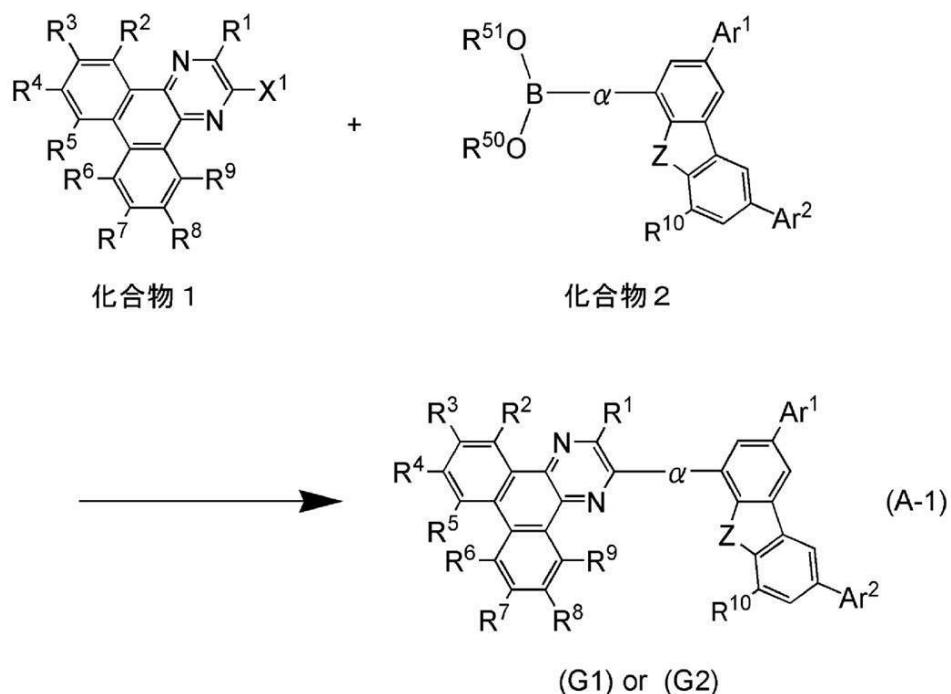
## 【 0 0 8 6 】

一般式 (G1) または (G2) で表される複素環化合物の合成方法 1 はじめに合成スキーム (A-1) を以下に示す。

## 【 0 0 8 7 】

40

【化 3 9】



【 0 0 8 8 】

本発明の一態様の複素環化合物（G1）または（G2）は、合成スキーム（A-1）の  
ようにして合成することができる。すなわち、ジベンゾ[*f*,*h*]キノキサリン誘導体の  
ハロゲン化物（化合物1）と、ジベンゾフラン誘導体、又はジベンゾチオフェン誘導体の  
、有機ボロン化合物又はボロン酸（化合物2）とを、鈴木・宮浦反応によりカップリング  
させることで、本実施の形態で示す複素環化合物（G1）または（G2）を得ることができる。

〔 0 0 8 9 〕

合成スキーム (A - 1) において、 $\text{R}$  は置換または無置換のフェニレン基、または置換または無置換のビフェニルジイル基のいずれかを表し、 $\text{Ar}^1$ 、 $\text{Ar}^2$  は置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、のいずれかを表し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^{10}$  は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 13 の置換もしくは無置換のアリール基のいずれかを表す。 $\text{R}^{50}$  及び  $\text{R}^{51}$  はそれぞれ独立に、水素、又は炭素数 1 ~ 6 のアルキル基のいずれかを表す。合成スキーム (A - 1) において、 $\text{R}^5$  と  $\text{R}^{51}$  は互いに結合して環を形成しても良い。また、 $\text{X}^1$  はハロゲンを表す。

【 0 0 9 0 】

合成スキーム(A-1)において、用いることができるパラジウム触媒としては、酢酸パラジウム(II)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)、ビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロライド等が挙げられるが、用いることができるパラジウム触媒はこれらに限られるものでは無い。

【 0 0 9 1 】

合成スキーム（A - 1）において、用いることができるパラジウム触媒の配位子としては、トリ（オルト-トリル）ホスフィンや、トリフェニルホスフィンや、トリシクロヘキシルホスフィン等が挙げられる。用いることができるパラジウム触媒の配位子はこれらに限られるものでは無い。

【 0 0 9 2 】

合成スキーム(A-1)において、用いることができる塩基としては、ナトリウム  $t$  - プロトキシド等の有機塩基や、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム等の無機塩基等が挙げられる。

げられるが、用いることができる塩基はこれらに限られるものでは無い。

〔 0 0 9 3 〕

合成スキーム（A-1）において、用いることができる溶媒としては、トルエンと水の混合溶媒、トルエンとエタノール等のアルコールと水の混合溶媒、キシレンと水の混合溶媒、キシレンとエタノール等のアルコールと水の混合溶媒、ベンゼンと水の混合溶媒、ベンゼンとエタノール等のアルコールと水の混合溶媒、エチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル類と水の混合溶媒などが挙げられる。ただし、用いることができる溶媒はこれらに限られるものでは無い。また、トルエンと水の混合溶媒、トルエンとエタノールと水の混合溶媒、及びエチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル類と水の混合溶媒がより好ましい。

10

〔 0 0 9 4 〕

合成スキーム（A - 1）に示すカップリング反応としては、化合物2で示される有機ホウ素化合物、又はボロン酸を用いる鈴木・宮浦反応の代わりに、有機アルミニウムや、有機ジルコニウム、有機亜鉛、有機スズ化合物等を用いるクロスカップリング反応を用いてもよい。ただし、これらに限定されるものではない。

〔 0 0 9 5 〕

また、合成スキーム(A-1)に示す鈴木・宮浦カップリング反応において、ジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン誘導体の有機ホウ素化合物又はボロン酸と、カルバゾール誘導体、ジベンゾフラン誘導体、もしくはジベンゾチオフェン誘導体のハロゲン化物又はトリフルオロート置换体とを、鈴木・宮浦反応によりカップリングしてもよい。

20

〔0096〕

以上によつて、本実施の形態の複素環化合物を合成することができる。

【0097】

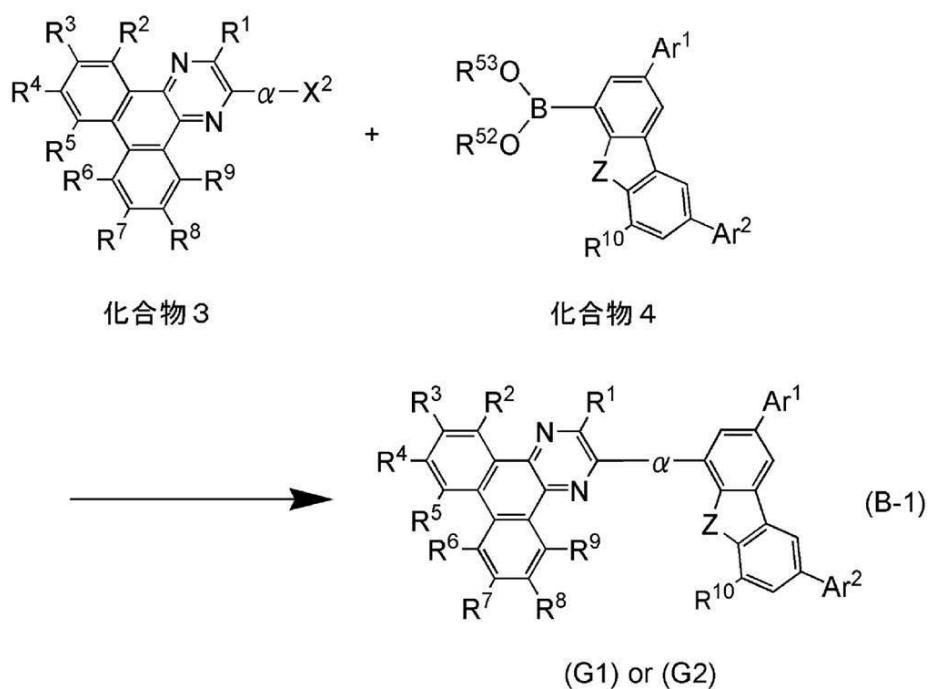
一般式 (G1) または (G2) で表される複素環化合物の合成方法?

以下では、一般式 (G1) または (G2) で表される複素環化合物の別の合成方法について説明する。はじめに、ホウ素化合物を原料に用いる場合の、合成スキーム (B-1) を以下に示す。

卷之二

1 5 5 5 8

88



【 0 0 9 9 】

合成スキーム (B-1) に示すように、ジベンゾ [f, h] キノキサリン誘導体の八口

50

ゲン化物（化合物3）と、ジベンゾフラン誘導体、又はジベンゾチオフェン誘導体の有機ボロン化合物もしくはボロン酸（化合物4）とを、鈴木・宮浦反応によりカップリングさせることで、本実施の形態で示す複素環化合物（G1）または（G2）を得ることができる。

【0100】

合成スキーム（B-1）において、 $\text{Ar}^1$  は置換または無置換のフェニレン基、または置換または無置換のビフェニルジイル基のいずれかを表し、 $\text{Ar}^2$  は置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、のいずれかを表し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^{10}$  は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数6～13の置換もしくは無置換のアリール基のいずれかを表す。合成スキーム（B-1）において、 $\text{R}^{52}$  および $\text{R}^{53}$  は水素、炭素数1～6のアルキル基のいずれかを表す。合成スキーム（B-1）において $\text{R}^{52}$  と $\text{R}^{53}$  は互いに結合して環を形成していても良い。また、 $\text{X}^2$  はハロゲン、又はトリフラーート基を表し、ハロゲンとしては、ヨウ素及び臭素がより好ましい。  
10

【0101】

合成スキーム（B-1）において、用いることができるパラジウム触媒としては、酢酸パラジウム（II）、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（0）、ビス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（II）ジクロライド等が挙げられるが、用いることができるパラジウム触媒はこれらに限られるものでは無い。

【0102】

合成スキーム（B-1）において、用いることができるパラジウム触媒の配位子としては、トリ（オルト-トリル）ホスフィンや、トリフェニルホスフィンや、トリシクロヘキシルホスフィン等が挙げられるが、用いることができるパラジウム触媒の配位子はこれらに限られるものでは無い。  
20

【0103】

合成スキーム（B-1）において、用いることができる塩基としては、ナトリウム $\text{tert}$ -ブトキシド等の有機塩基や、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム等の無機塩基等が挙げられるが、用いることができる塩基はこれらに限られるものでは無い。

【0104】

合成スキーム（B-1）において、用いることができる溶媒としては、トルエンと水の混合溶媒、トルエンとエタノール等のアルコールと水の混合溶媒、キシレンと水の混合溶媒、キシレンとエタノール等のアルコールと水の混合溶媒、ベンゼンと水の混合溶媒、ベンゼンとエタノール等のアルコールと水の混合溶媒、エチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル類と水の混合溶媒などが挙げられる。ただし、用いることができる溶媒はこれらに限られるものでは無い。また、トルエンと水の混合溶媒、トルエンとエタノールと水の混合溶媒、エチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル類と水の混合溶媒がより好ましい。  
30

【0105】

合成スキーム（B-1）に示すカップリング反応としては、化合物4で示される有機ホウ素化合物、又はボロン酸を用いる鈴木・宮浦反応の代わりに、有機アルミニウムや、有機ジルコニウム、有機亜鉛、有機スズ化合物等を用いるクロスカップリング反応を用いてもよい。ただし、これらに限定されるものではない。また、このカップリングにおいて、ハロゲン以外にもトリフラーート基等を用いても良いが、これらに限定されるものではない。  
40

【0106】

また、合成スキーム（B-1）に示す鈴木・宮浦カップリング反応において、ジベンゾ[ $f$ ,  $h$ ]キノキサリン誘導体の有機ホウ素化合物、又はボロン酸と、カルバゾール誘導体、ジベンゾフラン誘導体、もしくはジベンゾチオフェン誘導体のハロゲン化物、又はトリフラーート置換体とを、鈴木・宮浦反応によりカップリングしてもよい。

【0107】

以上によって、本実施の形態の複素環化合物を合成することができる。  
50

## 【0108】

本実施の形態の複素環化合物は、耐熱性に優れているため、長寿命の発光素子を実現することができる。また、広いバンドギャップを有するため、発光素子において、発光層の発光物質を分散させるホスト材料に用いることで、高い電流効率を得ることができる。特に、熒光性化合物を分散させるホスト材料として好適である。また、本実施の形態の複素環化合物は、電子輸送性の高い物質であるため、発光素子における電子輸送層の材料として好適に用いることができる。本実施の形態の複素環化合物を用いることにより、駆動電圧の低い発光素子を実現することができる。また、電流効率の高い発光素子を実現することができる。さらに、この発光素子を用いることで、消費電力の低減された発光装置、電子機器及び照明装置を得ることができる。

10

## 【0109】

## (実施の形態2)

本実施の形態では、本発明の一態様として実施の形態1で示した複素環化合物を用いることができる発光素子について図1を用いて説明する。

## 【0110】

本実施の形態に示す発光素子は、図1に示すように一対の電極(第1の電極(陽極)101と第2の電極(陰極)103)間に発光層113を含むEL層102が挟まれてあり、EL層102は、発光層113の他に、正孔(または、ホール)注入層111、正孔(または、ホール)輸送層112、電子輸送層114、電子注入層115、電荷発生層(E)116などを含んで形成される。

20

## 【0111】

このような発光素子に対して電圧を印加することにより、第1の電極101側から注入された正孔と第2の電極103側から注入された電子とが、発光層113において再結合し、発光層113に含まれる物質を励起状態にする。そして、励起状態の物質が基底状態に戻る際に発光する。

## 【0112】

なお、EL層102における正孔注入層111は、正孔輸送性の高い物質とアクセプター性物質を含む層であり、アクセプター性物質によって正孔輸送性の高い物質から電子が引き抜かれることにより正孔(ホール)が発生する。従って、正孔注入層111から正孔輸送層112を介して発光層113に正孔が注入される。

30

## 【0113】

また、電荷発生層(E)116は、正孔輸送性の高い物質とアクセプター性物質を含む層である。アクセプター性物質によって正孔輸送性の高い物質から電子が引き抜かれるため、引き抜かれた電子が、電子注入性を有する電子注入層115から電子輸送層114を介して発光層113に注入される。

## 【0114】

以下に本実施の形態に示す発光素子を作製するまでの具体例について説明する。

## 【0115】

第1の電極(陽極)101および第2の電極(陰極)103には、金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることができる。具体的には、酸化インジウム-酸化スズ(ITO: Indium Tin Oxide)、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム-酸化スズ、酸化インジウム-酸化亜鉛(Indium Zinc Oxide)、酸化タンゲステン及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム、金(Au)、白金(Pt)、ニッケル(Ni)、タンゲステン(W)、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、銅(Cu)、パラジウム(Pd)、チタン(Ti)の他、元素周期表の第1族または第2族に属する元素、すなわちリチウム(Li)やセシウム(Cs)等のアルカリ金属、およびカルシウム(Ca)、ストロンチウム(Sr)等のアルカリ土類金属、マグネシウム(Mg)、およびこれらを含む合金(MgAg、AlLi)、ユウロピウム(Eu)、イッテルビウム(Yb)等の希土類金属およびこれらを含む合金、その他グラフェン等を用いることができる。なお、第1の電極(陽

40

50

極) 101 および第2の電極(陰極)103は、例えばスパッタリング法や蒸着法(真空蒸着法を含む)等により形成することができる。

【0116】

正孔注入層111、正孔輸送層112、および電荷発生層(E)116に用いる正孔輸送性の高い物質として、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:NPBまたは-NPD)やN,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン(略称:TPD)、4,4',4'''-トリス(カルバゾール-9-イル)トリフェニルアミン(略称:TCTA)、4,4',4'''-トリス(N,N-ジフェニルアミノ)トリフェニルアミン(略称:TDATA)、4,4',4'''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(略称:MTDATA)、4,4'-ビス[N-(スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:BSPB)などの芳香族アミン化合物、3-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール(略称:PCzPCA1)、3,6-ビス[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール(略称:PCzPCA2)、3-[N-(1-ナフチル)-N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)アミノ]-9-フェニルカルバゾール(略称:PCzPCN1)等が挙げられる。その他、4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル(略称:CBP)、1,3,5-トリス[4-(N-カルバゾリル)フェニル]ベンゼン(略称:TCPB)、9-[4-(10-フェニル-9-アントラセニル)フェニル]-9H-カルバゾール(略称:CzPA)等のカルバゾール化合物、等を用いることができる。ここに述べた物質は、主に10<sup>-6</sup> cm<sup>2</sup>/Vs以上の中孔移動度を有する物質である。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。

【0117】

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。

【0118】

なお、正孔輸送性の高い物質としては、本発明の一態様である複素環化合物を用いることもできる。

【0119】

また、正孔注入層111および電荷発生層(E)116に用いるアクセプター性物質としては、遷移金属酸化物や元素周期表における第4族乃至第8族に属する金属の酸化物を挙げることができる。具体的には、酸化モリブデンが特に好ましい。

【0120】

発光層113は、発光性の物質を含む層である。発光層113は、発光物質のみで構成されていても、ホスト材料中に発光中心物質が分散された状態で構成されていても良い。

【0121】

発光層113において、発光物質、および発光中心物質として用いることが可能な材料には、特に限定は無く、これらの物質が発する光は、蛍光であっても燐光であっても良い。なお、上記発光物質および発光中心物質としては、例えば、以下のようなものが挙げられる。

【0122】

蛍光を発する物質としては、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:YGA2S)、4-(9H-カルバゾール-9-イル)-4'-(10-フェニル-9-アントリル

10

20

30

40

50

) トリフェニルアミン(略称: Y G A P A )、4 - ( 9 H - 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: 2 Y G A P P A )、N , 9 - ジフェニル - N - [ 4 - ( 10 - フェニル - 9 - アントリル ) フェニル ] - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン(略称: P C A P A )、ペリレン、2 , 5 , 8 , 11 - テトラ(tert-ブチル)ペリレン(略称: T B P )、4 - ( 10 - フェニル - 9 - アントリル ) - 4 ' - ( 9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル ) トリフェニルアミン(略称: P C B A P A )、N , 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: D P A B P A )、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 ] - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン(略称: 2 P C A P P A )、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: 2 D P A P P A )、N , N , N ' , N ' , N ' , N ' , N ' , N ' - オクタフェニルジベンゾ[g , p]クリセン - 2 , 7 , 10 , 15 - テトラアミン(略称: D B C 1 )、クマリン30、N - ( 9 , 10 - ジフェニル - 2 - アントリル ) - N , 9 - ジフェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン(略称: 2 P C A P A )、N - [ 9 , 10 - ビス(1 , 1 ' - ビフェニル - 2 - イル ) - 2 - アントリル ] - N , 9 - ジフェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン(略称: 2 P C A B P h A )、N - ( 9 , 10 - ジフェニル - 2 - アントリル ) - N , N ' , N ' - トリフェニル - 1 , 4 - フェニレンジアミン(略称: 2 D P A P A )、N - [ 9 , 10 - ビス(1 , 1 ' - ビフェニル - 2 - イル ) - 2 - アントリル ] - N , N ' , N ' - トリフェニル - 1 , 4 - フェニレンジアミン(略称: 2 D P A B P h A )、9 , 10 - ビス(1 , 1 ' - ビフェニル - 2 - イル ) - N - [ 4 - ( 9 H - カルバゾール - 9 - イル ) フェニル ] - N - フェニルアントラセン - 2 - アミン(略称: 2 Y G A B P h A )、N , N , 9 - トリフェニルアントラセン - 9 - アミン(略称: D P h A P h A )クマリン545T、N , N ' - ジフェニルキナクリドン、(略称: D P Q d )、ルブレン、5 , 12 - ビス(1 , 1 ' - ビフェニル - 4 - イル ) - 6 , 11 - ジフェニルテトラセン(略称: B P T )、2 - { 2 - { 2 - [ 4 - ( ジメチルアミノ ) フェニル ] エテニル } - 6 - メチル - 4 H - ピラン - 4 - イリデン } プロパンジニトリル(略称: D C M 1 )、2 - { 2 - メチル - 6 - [ 2 - ( 2 , 3 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H , 5 H - ベンゾ[i j]キノリジン - 9 - イル ) エテニル ] - 4 H - ピラン - 4 - イリデン } プロパンジニトリル(略称: D C M 2 )、N , N , N ' , N ' - テトラキス(4 - メチルフェニル)テトラセン - 5 , 11 - ジアミン(略称: p - m P h T D )、7 , 14 - ジフェニル - N , N , N ' , N ' - テトラキス(4 - メチルフェニル)アセナフト[1 , 2 - a ]フルオランテン - 3 , 10 - ジアミン(略称: p - m P h A F D )、2 - { 2 - イソブロピル - 6 - [ 2 - ( 1 , 1 , 7 , 7 - テトラメチル - 2 , 3 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H , 5 H - ベンゾ[i j]キノリジン - 9 - イル ) エテニル ] - 4 H - ピラン - 4 - イリデン } プロパンジニトリル(略称: D C J T I )、2 - { 2 - tert - ブチル - 6 - [ 2 - ( 1 , 1 , 7 , 7 - テトラメチル - 2 , 3 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H , 5 H - ベンゾ[i j]キノリジン - 9 - イル ) エテニル ] - 4 H - ピラン - 4 - イリデン } プロパンジニトリル(略称: D C J T B )、2 - ( 2 , 6 - ビス{ 2 - [ 4 - ( ジメチルアミノ ) フェニル ] エテニル } - 4 H - ピラン - 4 - イリデン ) プロパンジニトリル(略称: B i s D C M )、2 - { 2 , 6 - ビス[ 2 - ( 8 - メトキシ - 1 , 1 , 7 , 7 - テトラメチル - 2 , 3 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H , 5 H - ベンゾ[i j]キノリジン - 9 - イル ) エテニル ] - 4 H - ピラン - 4 - イリデン } プロパンジニトリル(略称: B i s D C J T M )などが挙げられる。

## 【0123】

なお、蛍光を発する物質としては、本発明の一態様である複素環化合物を用いることができる。

## 【0124】

熒光を発する物質としては、ビス[2 - ( 3 ' , 5 ' - ビストリフルオロメチルフェニ

10

20

30

40

50

ル) ピリジナト - N , C<sup>2</sup>] イリジウム ( I I I ) ピコリナート ( 略称 : I r ( C F<sub>3</sub> p p y )<sub>2</sub> ( p i c ) ) 、 ビス [ 2 - ( 4' , 6' - ジフルオロフェニル ) ピリジナト - N , C<sup>2</sup>] イリジウム ( I I I ) アセチルアセトナート ( 略称 : F I r a c a c ) 、 ト 10 リス ( 2 - フェニルピリジナト ) イリジウム ( I I I ) ( 略称 : I r ( p p y )<sub>3</sub> ) 、 ビス ( 2 - フェニルピリジナト ) イリジウム ( I I I ) アセチルアセトナート ( 略称 : I r ( p p y )<sub>2</sub> ( a c a c ) ) 、 ト リス ( アセチルアセトナト ) ( モノフェナントロリン ) テルビウム ( I I I ) ( 略称 : T b ( a c a c )<sub>3</sub> ( P h e n ) ) 、 ビス ( ベンゾ [ h ] キノリナト ) イリジウム ( I I I ) アセチルアセトナート ( 略称 : I r ( b z q )<sub>2</sub> ( a c a c ) ) 、 ビス ( 2 , 4 - ジフェニル - 1 , 3 - オキサゾラト - N , C<sup>2</sup> ) イリジウム ( I I I ) 15 アセチルアセトナート ( 略称 : I r ( d p o )<sub>2</sub> ( a c a c ) ) 、 ビス { 2 - [ 4' - ( パーフルオロフェニル ) フェニル ] ピリジナト - N , C<sup>2</sup> } イリジウム ( I I I ) アセチルアセトナート ( 略称 : I r ( p - P F - p h )<sub>2</sub> ( a c a c ) ) 、 ビス ( 2 - フェニルベンゾチアゾラト - N , C<sup>2</sup> ) イリジウム ( I I I ) アセチルアセトナ 20 ート ( 略称 : I r ( b t )<sub>2</sub> ( a c a c ) ) 、 ビス [ 2 - ( 2' - ベンゾ [ 4 , 5 - ] チエニル ) ピリジナト - N , C<sup>3</sup> ] イリジウム ( I I I ) アセチルアセトナート ( 略称 : I r ( b t p )<sub>2</sub> ( a c a c ) ) 、 ビス ( 1 - フェニルイソキノリナト - N , C<sup>2</sup> ) イリジウム ( I I I ) アセチルアセトナート ( 略称 : I r ( p i q )<sub>2</sub> ( a c a c ) ) 、 ( アセチルアセトナト ) ビス [ 2 , 3 - ビス ( 4 - フルオロフェニル ) キノキサリナト ] イリジウム ( I I I ) ( 略称 : I r ( F d p q )<sub>2</sub> ( a c a c ) ) 、 ( 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 ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( m p p r - M e )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) 、 ( 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 ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( m p p r - i P r )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) 、 ( アセチルアセトナト ) ビス ( 2 , 3 , 5 - ト リフェニルピラジナト ) イリジウム ( I I I ) ( 略称 : I r ( t p p r )<sub>2</sub> ( a c a c ) ) 、 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 ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( t p p r )<sub>2</sub> ( d p m ) ] ) 、 ( アセチルアセトナト ) ビス ( 6 - t e r t - ブチル - 4 - フェニルピリミジナト ) イリジウム ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( t B u p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) 、 ( アセチルアセトナト ) ビス ( 4 , 6 - ジフェニルピリミジナト ) イリジウム ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) 、 2 , 3 , 7 , 8 , 1 2 , 1 3 , 1 7 , 1 8 - オクタエチル - 2 1 H , 2 3 H - ボ 30 ルフィリン白金 ( I I ) ( 略称 : P t O E P ) 、 ト リス ( 1 , 3 - ジフェニル - 1 , 3 - プロパンジオナト ) ( モノフェナントロリン ) ユーロピウム ( I I I ) ( 略称 : E u ( D B M )<sub>3</sub> ( P h e n ) ) 、 ト リス [ 1 - ( 2 - テノイル ) - 3 , 3 , 3 - ト リフルオロアセトナト ] ( モノフェナントロリン ) ユーロピウム ( I I I ) ( 略称 : E u ( T T A )<sub>3</sub> ( P h e n ) ) などが挙げられる。

### 【 0 1 2 5 】

また、上記ホスト材料に用いることが可能な材料としては、特に限定はないが、例えば 40 、 ト リス ( 8 - キノリノラト ) アルミニウム ( I I I ) ( 略称 : A l q ) 、 ト リス ( 4 - メチル - 8 - キノリノラト ) アルミニウム ( I I I ) ( 略称 : A l m q<sub>3</sub> ) 、 ビス ( 1 0 - ヒドロキシベンゾ [ h ] キノリナト ) ベリリウム ( I I ) ( 略称 : B e B q<sub>2</sub> ) 、 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 ( I I I ) ( 略称 : B A l q ) 、 ビス ( 8 - キノリノラト ) 亜鉛 ( I I ) ( 略称 : Z n q ) 、 ビス [ 2 - ( 2 - ベンゾオキサゾリル ) フエノラト ] 亜鉛 ( I I ) ( 略称 : Z n P B O ) 、 ビス [ 2 - ( 2 - ベンゾチアゾリル ) フエノラト ] 亜鉛 ( I I ) ( 略称 : Z n B T Z ) などの 45 金属錯体、 2 - ( 4 - ビフェニリル ) - 5 - ( 4 - t e r t - ブチルフェニル ) - 1 , 3 , 4 - オキサジアゾール ( 略称 : P B D ) 、 1 , 3 - ビス [ 5 - ( p - t e r t - 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 : O X D - 7 ) 、 3 - ( 4 - ビフェニリル ) - 4 - フェニル - 5 - ( 4 - t e r t - ブチルフェニル ) - 1 , 2 , 4 - ト リアゾール ( 略称 : T A Z ) 、 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 : T P B I ) 50

、パソフェナントロリン(略称: B P h e n )、パソキュプロイン(略称: B C P )、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: C O 1 1 )などの複素環化合物、4 , 4 ' - ビス [ N - ( 1 - ナフチル ) - N - フェニルアミノ ] ピフェニル(略称: N P B または - N P D )、N , N ' - ビス ( 3 - メチルフェニル ) - N , N ' - ジフェニル - [ 1 , 1 ' - ピフェニル ] - 4 , 4 ' - ジアミン(略称: T P D )、4 , 4 ' - ビス [ N - ( スピロ - 9 , 9 ' - ピフルオレン - 2 - イル ) - N - フェニルアミノ ] ピフェニル(略称: B S P B )などの芳香族アミン化合物が挙げられる。また、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 , 1 0 - ジフェニルアントラセン(略称: D P A n t h ) 10 、N , N - ジフェニル - 9 - [ 4 - ( 1 0 - フェニル - 9 - アントリル ) フェニル ] - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン(略称: C z A 1 P A )、4 - ( 1 0 - フェニル - 9 - アントリル ) トリフェニルアミン(略称: D P h P A )、4 - ( 9 H - カルバゾール - 9 - イル ) - 4 ' - ( 1 0 - フェニル - 9 - アントリル ) トリフェニルアミン(略称: Y G A P A )、N , 9 - ジフェニル - N - [ 4 - ( 1 0 - フェニル - 9 - アントリル ) フェニル ] - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン(略称: P C A P A )、N , 9 - ジフェニル - N - { 4 - [ 4 - ( 1 0 - フェニル - 9 - アントリル ) フェニル ] フェニル } - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン(略称: P C A P B A )、N , 9 - ジフェニル - N - ( 9 , 1 0 - ジフェニル - 2 - アントリル ) - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン(略称: 2 P C A P A ) 20 、6 , 1 2 - ジメトキシ - 5 , 1 1 - ジフェニルクリセン、N , N , N ' , N ' , N ' , N ' , N ' , N ' - オクタフェニルジベンゾ [ g , p ] クリセン - 2 , 7 , 1 0 , 1 5 - テトラアミン(略称: D B C 1 )、9 - [ 4 - ( 1 0 - フェニル - 9 - アントリル ) フェニル ] - 9 H - カルバゾール(略称: C z P A )、3 , 6 - ジフェニル - 9 - [ 4 - ( 1 0 - フェニル - 9 - アントリル ) フェニル ] - 9 H - カルバゾール(略称: D P C z P A )、9 , 1 0 - ビス ( 3 , 5 - ジフェニルフェニル ) アントラセン(略称: D P P A )、9 , 1 0 - ジ ( 2 - ナフチル ) アントラセン(略称: D N A )、2 - t e r t - ブチル - 9 , 1 0 - ジ ( 2 - ナフチル ) アントラセン(略称: t - B u D N A )、9 , 9 ' - ビアントリル(略称: B A N T )、9 , 9 ' - ( スチルベン - 3 , 3 ' - ジイル ) ジフェナントレン(略称: D P N S )、9 , 9 ' - ( スチルベン - 4 , 4 ' - ジイル ) ジフェナントレン(略称: D P N S 2 )、1 , 3 , 5 - トリ ( 1 - ピレニル ) ベンゼン(略称: T P B 3 )などを挙げることができる。これら及び公知の物質の中から、上記発光中心物質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。また、発光中心物質が発光を発する物質である場合、ホスト材料としては、発光中心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物質を選択すれば良い。 30

#### 【 0 1 2 6 】

なお、上記ホスト材料に用いることが可能な材料としては、本発明の一態様である複素環化合物を用いることもできる。本発明の一態様である複素環化合物はS 1 準位が高いため、蛍光を発する物質用のホスト材料としては、可視域の発光領域で用いることができる。

#### 【 0 1 2 7 】

また、本発明の一態様であるジベンゾ [ f , h ] キノキサリン環と正孔輸送骨格とがベンゼン環を介して結合した構造を有する複素環化合物は、ジベンゾ [ f , h ] キノキサリン骨格がL U M O 準位に対して支配的な骨格であると考えられる。また、該化合物は、サイクリックボルタンメトリ ( C V ) 測定によれば、少なくとも - 2 . 8 e V 以下、具体的には - 2 . 9 e V 以下の深いL U M O 準位を有する。例えば、C V 測定から求めた2 m D B T P D B q - I I のL U M O 準位は、- 2 . 9 6 e V である。一方、上述した [ I r ( m p p r - M e ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] 、 [ I r ( m p p r - i P r ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] 、 [ I r ( t p p r ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] 、 [ I r ( t p p r ) <sub>2</sub> ( d p m ) ] のようなピラジン骨格を有する発光性化合物や、[ I r ( t B u p p m ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] 、 [ I r ( d 50

$\text{ppm}_2$  (a c a c)] のようなピリミジン骨格を有する発光性化合物に代表されるジアジン骨格を有する発光性化合物は、ほぼ同等の深い LUMO 準位を有している。したがって、本発明の一態様である複素環化合物をホスト材料とし、ジアジン骨格（特にピラジン骨格やピリミジン骨格）を有する発光性化合物をゲスト材料とする発光層の構成は、発光層内での電子のトラップを極力抑制することができ、極めて低い駆動電圧が実現できる。

#### 【0128】

なお、発光層 113 は 2 層以上が積層された構成としてもよい。例えば、第 1 の発光層と第 2 の発光層を正孔輸送層側から順に積層して発光層 113 とする場合、第 1 の発光層のホスト材料として正孔輸送性を有する物質を用い、第 2 の発光層のホスト材料として電子輸送性を有する物質を用いる構成などがある。

#### 【0129】

電子輸送層 114 は、電子輸送性の高い物質を含む層である。電子輸送層 114 には、 $\text{Alq}_3$ 、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム（略称： $\text{Almq}_3$ ）、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[ $h$ ]キノリナト)ベリリウム（略称： $\text{BeBq}_2$ ）、 $\text{BA1q}$ 、 $\text{Zn}(\text{BOX})_2$ 、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾラト]亜鉛（略称： $\text{Zn(BTZ)}_2$ ）などの金属錯体を用いることができる。また、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール（略称： $\text{PBD}$ ）、1,3-ビス[5-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼン（略称： $\text{OXD-7}$ ）、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4-ビフェニリル)-1,2,4-トリアゾール（略称： $\text{TAZ}$ ）、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ビフェニリル)-1,2,4-トリアゾール（略称： $\text{p-ETTAZ}$ ）、パソフェナントロリン（略称： $\text{BPhen}$ ）、パソキュプロイン（略称： $\text{BCP}$ ）、4,4'-ビス(5-メチルベンゾ[ $o$ ]キサゾール-2-イル)スチルベン（略称： $\text{BzOs}$ ）などの複素芳香族化合物も用いることができる。また、ポリ(2,5-ピリジンジイル)（略称： $\text{PPy}$ ）、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： $\text{PF-Py}$ ）、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： $\text{PF-BPy}$ ）のような高分子化合物を用いることもできる。ここに述べた物質は、主に  $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  以上の電子移動度を有する物質である。なお、正孔よりも電子の輸送性の高い物質であれば、上記以外の物質を電子輸送層として用いてよい。

#### 【0130】

なお、電子輸送性の高い物質としては、本発明の一態様である複素環化合物を用いることもできる。

#### 【0131】

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

#### 【0132】

電子注入層 115 は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入層 115 には、フッ化リチウム( $\text{LiF}$ )、フッ化セシウム( $\text{CsF}$ )、フッ化カルシウム( $\text{CaF}_2$ )、リチウム酸化物( $\text{LiOx}$ )等のようなアルカリ金属、アルカリ土類金属、またはそれらの化合物を用いることができる。また、フッ化エルビウム( $\text{ErF}_3$ )のような希土類金属化合物を用いることができる。また、上述した電子輸送層 114 を構成する物質を用いることもできる。

#### 【0133】

あるいは、電子注入層 115 に、有機化合物と電子供与体（ドナー）とを混合してなる複合材料を用いてよい。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

10

20

30

40

50

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

## 【0134】

10

なお、上述した正孔注入層111、正孔輸送層112、発光層113、電子輸送層114、電子注入層115、電荷発生層（E）116は、それぞれ、蒸着法（真空蒸着法を含む）、インクジェット法、塗布法等の方法で形成することができる。

## 【0135】

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

## 【0136】

20

以上により説明した発光素子は、本発明の一態様である複素環化合物を適用して形成されることから、発光素子の耐熱性の向上だけでなく、素子効率を高め、駆動電圧の上昇を最小限に抑えることができる。

## 【0137】

また、本発明の一態様である複素環化合物は、発光層の発光性物質に対するホスト材料として用いることがより好ましいが、発光層における発光物質、発光層における蛍光性物質に対するホスト材料、または、他の層（正孔注入層や正孔輸送層、電子輸送層など）にも用いることができるため、複数の層において共通の材料を用いることが可能となる。そのため、材料の合成コストや発光素子の製造コストを抑えることができ、好ましい。

## 【0138】

30

なお、本実施の形態で示した発光素子は、本発明の一態様である複素環化合物を適用して作製される発光素子の一例である。また、上記発光素子を備えた発光装置の構成としては、パッシブマトリクス型の発光装置やアクティブマトリクス型の発光装置の他、別の実施の形態で説明する上記とは別の構造を有する発光素子を備えたマイクロキャビティー構造の発光装置などを作製することができ、これらは、いずれも本発明に含まれるものとする。なお、これらの発光装置においては、消費電力を低減させることができる。

## 【0139】

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

40

## 【0140】

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。

## 【0141】

## (実施の形態3)

本実施の形態では、本発明の一態様として、発光性化合物と他の2種類以上の有機化合物を発光層に用いた発光素子について説明する。

50

**【 0 1 4 2 】**

本実施の形態に示す発光素子は、図2に示すように一対の電極（陽極201及び陰極202）間にEL層203を有する構造である。なお、EL層203には、少なくとも発光層204を有し、その他、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（E）などが含まれていても良い。なお、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（E）には、実施の形態2に示した物質を用いることができる。

**【 0 1 4 3 】**

本実施の形態に示す発光層204には、燐光性化合物205、第1の有機化合物206、および第2の有機化合物207が含まれている。実施の形態1に示した複素環化合物は、第1の有機化合物206、または第2の有機化合物207として用いることができる。  
10 なお、燐光性化合物205は、発光層204におけるゲスト材料である。また、第1の有機化合物206、および第2の有機化合物207のうち発光層204に含まれる割合の多い方を発光層204におけるホスト材料とする。

**【 0 1 4 4 】**

発光層204において、上記ゲスト材料をホスト材料に分散させた構成とすることにより、発光層の結晶化を抑制することができる。また、ゲスト材料の濃度が高いことによる濃度消光を抑制し、発光素子の発光効率を高くすることができる。

**【 0 1 4 5 】**

なお、第1の有機化合物206及び第2の有機化合物207のそれぞれの三重項励起エネルギーの準位（T1準位）は、燐光性化合物205のT1準位よりも高いことが好ましい。第1の有機化合物206（又は第2の有機化合物207）のT1準位が燐光性化合物205のT1準位よりも低いと、発光に寄与する燐光性化合物205の三重項励起エネルギーを第1の有機化合物206（又は第2の有機化合物207）が消光（クエンチ）してしまい、発光効率の低下を招くためである。  
20

**【 0 1 4 6 】**

ここで、ホスト材料からゲスト材料へのエネルギー移動効率を高めるため、分子間のエネルギー移動機構として知られているフェルスター機構（双極子-双極子相互作用）およびデクスター機構（電子交換相互作用）を考慮した上で、ホスト材料の発光スペクトル（一重項励起状態からのエネルギー移動を論じる場合は蛍光スペクトル、三重項励起状態からのエネルギー移動を論じる場合は燐光スペクトル）とゲスト材料の吸収スペクトル（より詳細には、最も長波長（低エネルギー）側の吸収帯におけるスペクトル）との重なりが大きくなることが好ましい。しかしながら通常、ホスト材料の蛍光スペクトルを、ゲスト材料の最も長波長（低エネルギー）側の吸収帯における吸収スペクトルと重ねることは困難である。なぜならば、そのようにしてしまうと、ホスト材料の燐光スペクトルは蛍光スペクトルよりも長波長（低エネルギー）側に位置するため、ホスト材料のT1準位が燐光性化合物のT1準位を下回ってしまい、上述したクエンチの問題が生じてしまうからである。一方、クエンチの問題を回避するため、ホスト材料のT1準位が燐光性化合物のT1準位を上回るように設計すると、今度はホスト材料の蛍光スペクトルが短波長（高エネルギー）側にシフトするため、その蛍光スペクトルはゲスト材料の最も長波長（低エネルギー）側の吸収帯における吸収スペクトルと重ならなくなる。したがって、ホスト材料の蛍光スペクトルをゲスト材料の最も長波長（低エネルギー）側の吸収帯における吸収スペクトルと重ね、ホスト材料の一重項励起状態からのエネルギー移動を最大限に高めることは、通常困難である。  
30

**【 0 1 4 7 】**

そこで、本実施形態においては、第1の有機化合物および第2の有機化合物は、励起錯体を形成する組み合わせであることが好ましい。この場合、発光層204におけるキャリア（電子及びホール）の再結合の際に第1の有機化合物206と第2の有機化合物207は、励起錯体（エキサイブレックスとも言う）を形成する。これにより、発光層204において、第1の有機化合物206の蛍光スペクトルおよび第2の有機化合物207の蛍光スペクトルは、より長波長側に位置する励起錯体の発光スペクトルに変換される。そして  
40  
50

、励起錯体の発光スペクトルとゲスト材料の吸収スペクトルとの重なりが大きくなるように、第1の有機化合物と第2の有機化合物を選択すれば、一重項励起状態からのエネルギー移動を最大限に高めることができる。なお、三重項励起状態に関しても、ホスト材料ではなく励起錯体からのエネルギー移動が生じると考えられる。

## 【0148】

熒光性化合物205としては、熒光性の有機金属錯体を用いることが好ましい。また、第1の有機化合物206及び第2の有機化合物207としては、励起錯体を生じる組み合わせであればよいが、電子を受け取りやすい化合物（電子トラップ性化合物）と、ホールを受け取りやすい化合物（正孔トラップ性化合物）とを組み合わせることが好ましい。

## 【0149】

熒光性の有機金属錯体としては、例えば、ビス[2-(3',5'-ビストリフルオロメチルフェニル)ピリジナト-N, C<sup>2'</sup>]イリジウム(III)ピコリナート（略称：Ir(CF<sub>3</sub>ppy)<sub>2</sub>(pic)）、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N, C<sup>2'</sup>]イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：FIr(acac)）、トリス(2-フェニルピリジナト)イリジウム(III)（略称：Ir(ppy)<sub>3</sub>）、ビス(2-フェニルピリジナト)イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(ppy)<sub>2</sub>(acac)）、トリス(アセチルアセトナト)（モノフェナントロリン）テルビウム(III)（略称：Tb(acac)<sub>3</sub>(Phen)）、ビス(ベンゾ[h]キノリナト)イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(bzq)<sub>2</sub>(acac)）、ビス(2,4-ジフェニル-1,3-オキサゾラト-N, C<sup>2'</sup>)イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(dpo)<sub>2</sub>(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, C<sup>2'</sup>}イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(p-PF-ph)<sub>2</sub>(acac)）、ビス(2-フェニルベンゾチアゾラト-N, C<sup>2'</sup>)イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(bt)<sub>2</sub>(acac)）、ビス[2-(2'-ベンゾ[4,5-]チエニル)ピリジナト-N, C<sup>3'</sup>]イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(btp)<sub>2</sub>(acac)）、ビス(1-フェニルイソキノリナト-N, C<sup>2'</sup>)イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(piq)<sub>2</sub>(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：Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(acac)）、（アセチルアセトナト）ビス(2,3,5-トリフェニルピラジナト)イリジウム(III)（略称：Ir(tpopr)<sub>2</sub>(acac)）、2,3,7,8,12,13,17,18-オクタエチル-21H,23H-ポルフィリン白金(II)（略称：PtOEP）、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：Eu(DBM)<sub>3</sub>(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：Eu(TTA)<sub>3</sub>(Phen)）などが挙げられる。

## 【0150】

電子を受け取りやすい化合物としては、含窒素複素芳香族化合物のような電子不足型複素芳香族化合物が好ましく、例えば、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-II）、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：2mDBTPDBq-II）、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：2CzPDBq-II）、7-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン（略称：7mDBTPDBq-II）、及び、6-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン（略称：6mDBTPDBq-II）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が挙げられる。なお、本発明の一態様である複素環化合物は、電子を受け取りやすい化合物として用いることができる。

10

20

30

40

50

## 【0151】

ホールを受け取りやすい化合物としては、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、例えば、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：P C B A 1 B P）、4,4'-ジ(1-ナフチル)-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：P C B N B B）、3-[N-(1-ナフチル)-N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)アミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：P C z P C N 1）、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）、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：D P A 2 S F）、N,N'-ビス(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N,N'-ジフェニルベンゼン-1,3-ジアミン（略称：P C A 2 B）、N-(9,9-ジメチル-2-N',N'-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：D P N F）、N,N',N'''-トリフェニル-N,N',N'''-トリス(9-フェニルカルバゾール-3-イル)ベンゼン-1,3,5-トリアミン（略称：P C A 3 B）、2-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]スピロ-9,9'-ビフルオレン（略称：P C A S F）、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：D P A S F）、N,N'-ビス[4-(カルバゾール-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：Y G A 2 F）、4,4'-ビス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：T P D）、4,4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：D P A B）、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：D F L A D F L）、3-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：P C z P C A 1）、3-[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：P C z D P A 1）、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]フェニル}-N-フェニルアミノ)ビフェニル（略称：D N T P D）、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：P C z T P N 2）、3,6-ビス[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：P C z P C A 2）が挙げられる。なお、本発明の一態様である複素環化合物は、ホールを受け取りやすい化合物として用いることができる。

## 【0152】

上述した第1の有機化合物206及び第2の有機化合物207は、これらに限定されることなく、励起錯体を形成できる組み合わせであり、励起錯体の発光スペクトルが、燐光性化合物205の吸収スペクトルと重なり、励起錯体の発光スペクトルのピークが、燐光性化合物205の吸収スペクトルのピークよりも長波長であればよい。

## 【0153】

なお、電子を受け取りやすい化合物とホールを受け取りやすい化合物で第1の有機化合物206と第2の有機化合物207を構成する場合、その混合比によってキャリアバランスを制御することができる。具体的には、第1の有機化合物：第2の有機化合物=1:9~9:1の範囲が好ましい。

## 【0154】

本実施の形態で示した発光素子は、励起錯体の発光スペクトルと燐光性化合物の吸収スペクトルとの重なりを利用したエネルギー移動により、エネルギー移動効率を高めること

10

20

30

30

40

ができるため、外部量子効率の高い発光素子を実現することができる。

【0155】

なお、本発明に含まれる別の構成として、燐光性化合物205（ゲスト材料）の他の2種類の有機化合物として、正孔トラップ性のホスト分子、および電子トラップ性のホスト分子を用いて発光層204を形成し、2種類のホスト分子中に存在するゲスト分子に正孔と電子を導いて、ゲスト分子を励起状態とする現象（すなわち、Guest Coupled with Complementary Hosts: GCCH）が得られるよう発光層204を形成する構成も可能である。

【0156】

この時、正孔トラップ性のホスト分子、および電子トラップ性のホスト分子としては、  
10 それぞれ、上述した正孔を受け取りやすい化合物、および電子を受け取りやすい化合物を用いることができる。

【0157】

なお、本実施の形態で示した発光素子は、発光素子の構造の一例であるが、本発明の一態様である発光装置には、他の実施の形態で示す別の構造の発光素子を適用することもできる。また、上記発光素子を備えた発光装置の構成としては、パッシブマトリクス型の発光装置やアクティブマトリクス型の発光装置の他、別の実施の形態で説明する上記とは別の構造を有する発光素子を備えたマイクロキャビティー構造の発光装置などを作製することができ、これらは、いずれも本発明に含まれるものとする。

【0158】

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

【0159】

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。

【0160】

（実施の形態4）

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

【0161】

本実施の形態に示す発光素子は、図3（A）に示すように一対の電極（第1の電極301および第2の電極304）間に、複数のEL層（第1のEL層302（1）、第2のEL層302（2））を有するタンデム型発光素子である。

【0162】

本実施の形態において、第1の電極301は、陽極として機能する電極であり、第2の電極304は陰極として機能する電極である。なお、第1の電極301および第2の電極304は、実施の形態2と同様な構成を用いることができる。また、複数のEL層（第1のEL層302（1）、第2のEL層302（2））は、実施の形態2または実施の形態3で示したEL層と同様な構成であっても良いが、いずれかが同様の構成であっても良い。すなわち、第1のEL層302（1）と第2のEL層302（2）は、同じ構成であっても異なる構成であってもよく、その構成は実施の形態2または実施の形態3と同様なものを適用することができる。

【0163】

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

10

20

30

40

50

のEL層に正孔を注入する機能を有する。本実施の形態の場合には、第1の電極301に第2の電極304よりも電位が高くなるように電圧を印加すると、電荷発生層(I)305から第1のEL層302(1)に電子が注入され、第2のEL層302(2)に正孔が注入される。

【0164】

なお、電荷発生層(I)305は、光の取り出し効率の点から、可視光に対して透光性を有する(具体的には、電荷発生層(I)305に対する可視光の透過率が、40%以上)ことが好ましい。また、電荷発生層(I)305は、第1の電極301や第2の電極304よりも低い導電率であっても機能する。

【0165】

電荷発生層(I)305は、正孔輸送性の高い有機化合物に電子受容体(アクセプター)が添加された構成であっても、電子輸送性の高い有機化合物に電子供与体(ドナー)が添加された構成であってもよい。また、これらの両方の構成が積層されていても良い。

【0166】

正孔輸送性の高い有機化合物に電子受容体が添加された構成とする場合において、正孔輸送性の高い有機化合物としては、例えば、NPBやTPD、TDATA、MTDATA、4,4'-ビス[N-(スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-イル)-Nフェニルアミノ]ビフェニル(略称: BSB)などの芳香族アミン化合物等を用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質である。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い有機化合物であれば、上記以外の物質を用いても構わない。なお、本発明の一態様である複素環化合物を電荷発生層(I)305における正孔輸送性の高い有機化合物として用いることもできる。

【0167】

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

【0168】

一方、電子輸送性の高い有機化合物に電子供与体が添加された構成とする場合において、電子輸送性の高い有機化合物としては、例えば、Alq、Almq<sub>3</sub>、BeBq<sub>2</sub>、BA1qなど、キノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体等を用いることができる。また、この他、Zn(BOX)<sub>2</sub>、Zn(BTZ)<sub>2</sub>などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体なども用いることができる。さらに、金属錯体以外にも、PBDやOXD-7、TAZ、BPhen、BCPなども用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質である。なお、正孔よりも電子の輸送性の高い有機化合物であれば、上記以外の物質を用いても構わない。

【0169】

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(Ind)、酸化リチウム、炭酸セシウムなどを用いることが好ましい。また、テトラチアナフタセンのような有機化合物を電子供与体として用いてもよい。

【0170】

なお、上述した材料を用いて電荷発生層(I)305を形成することにより、EL層が積層された場合における駆動電圧の上昇を抑制することができる。

10

20

30

40

50

## 【0171】

本実施の形態では、EL層を2層有する発光素子について説明したが、図3(B)に示すように、n層(ただし、nは、3以上)のEL層(302(1)～302(n))を積層し、これらのEL層(302(1)～302(n))の間にそれぞれ電荷発生層(I)(305(1)～305(n-1))を配置した発光素子についても、同様に適用することが可能である。本実施の形態に係る発光素子のように、一対の電極間に複数のEL層を有する場合、EL層とEL層との間に電荷発生層(I)を配置することで、電流密度を低く保ったまま、高輝度領域での発光が可能である。電流密度を低く保てるため、長寿命素子を実現できる。また、照明を応用例とした場合は、電極材料の抵抗による電圧降下を小さくできるので、大面積での均一発光が可能となる。また、低電圧駆動が可能で消費電力が低い発光装置を実現することができる。10

## 【0172】

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

## 【0173】

また、3つのEL層を有する発光素子の場合でも同様であり、例えば、第1のEL層の発光色が赤色であり、第2のEL層の発光色が緑色であり、第3のEL層の発光色が青色である場合、発光素子全体としては、白色発光を得ることができる。20

## 【0174】

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。

## 【0175】

## (実施の形態5)

本実施の形態に示す発光装置は、一対の電極間での光の共振効果を利用した微小光共振器(マイクロキャビティ)構造を有しており、図4に示す様に一対の電極(反射電極401及び半透過・半反射電極402)間に少なくともEL層405を有する構造である発光素子を複数、有している。また、EL層405は、少なくとも発光領域となる発光層404を有し、その他、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(E)などが含まれていても良い。なお、本発明の一態様である複素環化合物は、EL層405に含まれる正孔注入層、正孔輸送層、発光層404、または電子輸送層に用いることができる。30

## 【0176】

本実施の形態では、図4に示すように構造の異なる発光素子(第1の発光素子(R)410R、第2の発光素子(G)410G、第3の発光素子(B)410B)を有して構成される発光装置について説明する。

## 【0177】

第1の発光素子(R)410Rは、反射電極401上に第1の透明導電層403aと、第1の発光層(B)404B、第2の発光層(G)404G、第3の発光層(R)404Rを一部に含むEL層405と、半透過・半反射電極402とが順次積層された構造を有する。また、第2の発光素子(G)410Gは、反射電極401上に第2の透明導電層403bと、EL層405と、半透過・半反射電極402とが順次積層された構造を有する。また、第3の発光素子(B)410Bは、反射電極401上にEL層405と、半透過・半反射電極402とが順次積層された構造を有する。40

## 【0178】

なお、上記発光素子(第1の発光素子(R)410R、第2の発光素子(G)410G、第3の発光素子(B)410B)において、反射電極401、EL層405、半透過・50

半反射電極 402 は共通である。また、第1の発光層 (B) 404B では、420 nm 以上 480 nm 以下の波長領域にピークをもつ光 (B) を発光させ、第2の発光層 (G) 404G では、500 nm 以上 550 nm 以下の波長領域にピークを持つ光 (G) を発光させ、第3の発光層 (R) 404R では、600 nm 以上 760 nm 以下の波長領域にピークを持つ光 (R) を発光させる。これにより、いずれの発光素子 (第1の発光素子 (R) 410R、第2の発光素子 (G) 410G、第3の発光素子 (B) 410B) でも、第1の発光層 (B) 404B、第2の発光層 (G) 404G、および第3の発光層 (R) 404R からの発光が重ね合わされた、すなわち可視光領域に渡るブロードな光を発光させることができる。なお、上記より、波長の長さは、B < G < R なる関係であるとする。

10

## 【0179】

本実施の形態に示す各発光素子は、それぞれ反射電極 401 と半透過・半反射電極 402 との間に EL 層 405 を挟んでなる構造を有しており、EL 層 405 に含まれる各発光層から全方向に射出される発光は、微小光共振器 (マイクロキャビティ) としての機能を有する反射電極 401 と半透過・半反射電極 402 とによって共振される。なお、反射電極 401 は、反射性を有する導電性材料により形成され、その膜に対する可視光の反射率が 40% ~ 100%、好ましくは 70% ~ 100% であり、かつその抵抗率が  $1 \times 10^{-2} \text{ cm}$  以下の膜であるとする。また、半透過・半反射電極 402 は、反射性を有する導電性材料と光透過性を有する導電性材料とにより形成され、その膜に対する可視光の反射率が 20% ~ 80%、好ましくは 40% ~ 70% であり、かつその抵抗率が  $1 \times 10^{-2} \text{ cm}$  以下の膜であるとする。

20

## 【0180】

また、本実施の形態では、各発光素子で、第1の発光素子 (R) 410R と第2の発光素子 (G) 410G にそれぞれ設けられた透明導電層 (第1の透明導電層 403a、第2の透明導電層 403b) の厚みを変えることにより、発光素子毎に反射電極 401 と半透過・半反射電極 402 の間の光学距離を変えている。つまり、各発光素子の各発光層から発光するブロードな光は、反射電極 401 と半透過・半反射電極 402 の間において、共振する波長の光を強め、共振しない波長の光を減衰させることができるために、素子毎に反射電極 401 と半透過・半反射電極 402 の間の光学距離を変えることにより、異なる波長の光を取り出すことができる。

30

## 【0181】

なお、光学距離 (光路長ともいう) とは、実際の距離に屈折率をかけたものであり、本実施の形態においては、実膜厚に  $n$  (屈折率) をかけたものを表している。すなわち、「光学距離 = 実膜厚  $\times n$ 」である。

## 【0182】

また、第1の発光素子 (R) 410R では、反射電極 401 から半透過・半反射電極 402 までの総厚を  $m_R / 2$  (ただし、 $m$  は 0 を除く自然数)、第2の発光素子 (G) 410G では、反射電極 401 から半透過・半反射電極 402 までの総厚を  $m_G / 2$  (ただし、 $m$  は 0 を除く自然数)、第3の発光素子 (B) 410B では、反射電極 401 から半透過・半反射電極 402 までの総厚を  $m_B / 2$  (ただし、 $m$  は 0 を除く自然数) としている。

40

## 【0183】

以上より、第1の発光素子 (R) 410R からは、主として EL 層 405 に含まれる第3の発光層 (R) 404R で発光した光 (R) が取り出され、第2の発光素子 (G) 410G からは、主として EL 層 405 に含まれる第2の発光層 (G) 404G で発光した光 (G) が取り出され、第3の発光素子 (B) 410B からは、主として EL 層 405 に含まれる第1の発光層 (B) 404B で発光した光 (B) が取り出される。なお、各発光素子から取り出される光は、半透過・半反射電極 402 側からそれぞれ射出される。

## 【0184】

また、上記構成において、反射電極 401 から半透過・半反射電極 402 までの総厚は

50

、厳密には反射電極 401 における反射領域から半透過・半反射電極 402 における反射領域までの総厚ということができる。しかし、反射電極 401 や半透過・半反射電極 402 における反射領域の位置を厳密に決定することは困難であるため、反射電極 401 と半透過・半反射電極 402 の任意の位置を反射領域と仮定することで充分に上述の効果を得ることができるものとする。

【0185】

次に、第1の発光素子 (R) 410Rにおいて、反射電極 401 から第3の発光層 (R) 404Rへの光学距離を所望の膜厚( $(2m' + 1)R/4$  (ただし、 $m'$  は自然数))に調節することにより、第3の発光層 (R) 404Rからの発光を増幅させることができる。第3の発光層 (R) 404Rからの発光のうち、反射電極 401 によって反射されて戻ってきた光 (第1の反射光) は、第3の発光層 (R) 404Rから半透過・半反射電極 402 に直接入射する光 (第1の入射光) と干渉を起こすため、反射電極 401 から第3の発光層 (R) 404Rへの光学距離を所望の値( $(2m' + 1)R/4$  (ただし、 $m'$  は自然数))に調節して設けることにより、第1の反射光と第1の入射光との位相を合わせ、第3の発光層 (R) 404Rからの発光を増幅させることができる。

10

【0186】

なお、反射電極 401 と第3の発光層 (R) 404Rとの光学距離とは、厳密には反射電極 401 における反射領域と第3の発光層 (R) 404Rにおける発光領域との光学距離ということができる。しかし、反射電極 401 における反射領域や第3の発光層 (R) 404Rにおける発光領域の位置を厳密に決定することは困難であるため、反射電極 401 の任意の位置を反射領域、第3の発光層 (R) 404Rの任意の位置を発光領域と仮定することで充分に上述の効果を得ることができるものとする。

20

【0187】

次に、第2の発光素子 (G) 410Gにおいて、反射電極 401 から第2の発光層 (G) 404Gへの光学距離を所望の膜厚( $(2m'' + 1)G/4$  (ただし、 $m''$  は自然数))に調節することにより、第2の発光層 (G) 404Gからの発光を増幅させることができる。第2の発光層 (G) 404Gからの発光のうち、反射電極 401 によって反射されて戻ってきた光 (第2の反射光) は、第2の発光層 (G) 404Gから半透過・半反射電極 402 に直接入射する光 (第2の入射光) と干渉を起こすため、反射電極 401 から第2の発光層 (G) 404Gへの光学距離を所望の値( $(2m'' + 1)G/4$  (ただし、 $m''$  は自然数))に調節して設けることにより、第2の反射光と第2の入射光との位相を合わせ、第2の発光層 (G) 404Gからの発光を増幅させることができる。

30

【0188】

なお、反射電極 401 と第2の発光層 (G) 404Gとの光学距離とは、厳密には反射電極 401 における反射領域と第2の発光層 (G) 404Gにおける発光領域との光学距離ということができる。しかし、反射電極 401 における反射領域や第2の発光層 (G) 404Gにおける発光領域の位置を厳密に決定することは困難であるため、反射電極 401 の任意の位置を反射領域、第2の発光層 (G) 404Gの任意の位置を発光領域と仮定することで充分に上述の効果を得ることができるものとする。

40

【0189】

次に、第3の発光素子 (B) 410Bにおいて、反射電極 401 から第1の発光層 (B) 404Bへの光学距離を所望の膜厚( $(2m''' + 1)B/4$  (ただし、 $m'''$  は自然数))に調節することにより、第1の発光層 (B) 404Bからの発光を増幅させることができる。第1の発光層 (B) 404Bからの発光のうち、反射電極 401 によって反射されて戻ってきた光 (第3の反射光) は、第1の発光層 (B) 404Bから半透過・半反射電極 402 に直接入射する光 (第3の入射光) と干渉を起こすため、反射電極 401 から第1の発光層 (B) 404Bへの光学距離を所望の値( $(2m''' + 1)B/4$  (ただし、 $m'''$  は自然数))に調節して設けることにより、第3の反射光と第3の入射光との位相を合わせ、第1の発光層 (B) 404Bからの発光を増幅させることができる。

50

## 【0190】

なお、第3の発光素子において、反射電極401と第1の発光層(B)404Bとの光学距離とは、厳密には反射電極401における反射領域と第1の発光層(B)404Bにおける発光領域との光学距離ということができる。しかし、反射電極401における反射領域や第1の発光層(B)404Bにおける発光領域の位置を厳密に決定することは困難であるため、反射電極401の任意の位置を反射領域、第1の発光層(B)404Bの任意の位置を発光領域と仮定することで充分に上述の効果を得ることができるものとする。

## 【0191】

なお、上記構成において、いずれの発光素子もEL層に複数の発光層を有する構造を有しているが、本発明はこれに限られることはなく、例えば、実施の形態4で説明したタンデム型発光素子の構成と組み合わせて、一つの発光素子に電荷発生層を挟んで複数のEL層を設け、それぞれのEL層に単数もしくは複数の発光層を形成する構成としてもよい。

10

## 【0192】

本実施の形態で示した発光装置は、マイクロキャビティ構造を有しており、同じEL層を有していても発光素子ごとに異なる波長の光を取り出すことができるためRGBの塗り分けが不要となる。従って、高精細化を実現することが容易であるなどの理由からフルカラー化を実現する上で有利である。また、特定波長の正面方向の発光強度を強めることができ可能となるため、低消費電力化を図ることができる。この構成は、3色以上の画素を用いたカラーディスプレイ(画像表示装置)に適用する場合に、特に有用であるが、照明などの用途に用いても良い。

20

## 【0193】

## (実施の形態6)

本実施の形態では、本発明の一態様である複素環化合物を発光層に用いた発光素子を有する発光装置について説明する。

## 【0194】

また、上記発光装置は、パッシブマトリクス型の発光装置でもアクティブマトリクス型の発光装置でもよい。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。

## 【0195】

本実施の形態では、アクティブマトリクス型の発光装置について図5を用いて説明する。

30

## 【0196】

なお、図5(A)は発光装置を示す上面図であり、図5(B)は図5(A)を鎖線A-A'で切断した断面図である。本実施の形態に係るアクティブマトリクス型の発光装置は、素子基板501上に設けられた画素部502と、駆動回路部(ソース線駆動回路)503と、駆動回路部(ゲート線駆動回路)504a、504bと、を有する。画素部502、駆動回路部503、及び駆動回路部504a、504bは、シール材505によって、素子基板501と封止基板506との間に封止されている。

## 【0197】

また、素子基板501上には、駆動回路部503、及び駆動回路部504a、504bに外部からの信号(例えば、ビデオ信号、クロック信号、スタート信号、又はリセット信号等)や電位を伝達する外部入力端子を接続するための引き回し配線507が設けられる。ここでは、外部入力端子としてFPC(フレキシブルプリントサーキット)508を設ける例を示している。なお、ここではFPCしか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基板(PWB)が取り付けられていても良い。本明細書における発光装置には、発光装置本体だけでなく、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

40

## 【0198】

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

50

と、画素部 502 が示されている。

【0199】

駆動回路部 503 は n チャネル型 TFT509 と p チャネル型 TFT510 とを組み合わせた CMOS 回路が形成される例を示している。なお、駆動回路部を形成する回路は、種々の CMOS 回路、PMOS 回路もしくは NMOS 回路で形成しても良い。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に駆動回路を形成することもできる。

【0200】

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

【0201】

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

【0202】

第 1 の電極（陽極）513 上には、EL 層 515 及び第 2 の電極（陰極）516 が積層形成されている。EL 層 515 は、少なくとも発光層が設けられている。また、EL 層 515 には、発光層の他に正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、電荷発生層等を適宜設けることができる。なお、本発明の一態様である複素環化合物は、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、または電子輸送層に適用することができる。

【0203】

なお、第 1 の電極（陽極）513、EL 層 515 及び第 2 の電極（陰極）516 との積層構造で、発光素子 517 が形成されている。第 1 の電極（陽極）513、EL 層 515 及び第 2 の電極（陰極）516 に用いる材料としては、実施の形態 2 に示す材料を用いることができる。また、ここでは図示しないが、第 2 の電極（陰極）516 は外部入力端子である FPC508 に電気的に接続されている。

【0204】

また、図 5 (B) に示す断面図では発光素子 517 を 1 つのみ図示しているが、画素部 502 において、複数の発光素子がマトリクス状に配置されているものとする。画素部 502 には、3 種類 (R、G、B) の発光が得られる発光素子をそれぞれ選択的に形成し、フルカラー表示可能な発光装置を形成することができる。また、カラーフィルタと組み合わせることによってフルカラー表示可能な発光装置としてもよい。

【0205】

さらに、シール材 505 で封止基板 506 を素子基板 501 と貼り合わせることにより、素子基板 501、封止基板 506、およびシール材 505 で囲まれた空間 518 に発光素子 517 が備えられた構造になっている。なお、空間 518 には、不活性気体（窒素やアルゴン等）が充填される場合の他、シール材 505 で充填される構成も含むものとする。

【0206】

なお、シール材 505 にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板 506 に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP (Fiberglass-Reinforced Plastics)、PVF (ポリビニルフロライド)、ポリエステル

10

20

30

40

50

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。

【0207】

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。

【0208】

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。

【0209】

(実施の形態7)

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

10

【0210】

発光装置を適用した電子機器として、例えば、テレビジョン装置（テレビ、又はテレビジョン受信機ともいう）、コンピュータ用などのモニタ、デジタルカメラ、デジタルビデオカメラ、デジタルフォトフレーム、携帯電話機（携帯電話、携帯電話装置ともいう）、携帯型ゲーム機、携帯情報端末、音響再生装置、パチンコ機などの大型ゲーム機などが挙げられる。これらの電子機器の具体例を図6に示す。

【0211】

図6(A)は、テレビジョン装置の一例を示している。テレビジョン装置7100は、筐体7101に表示部7103が組み込まれている。表示部7103により、映像を表示することが可能であり、発光装置を表示部7103に用いることができる。また、ここでは、スタンド7105により筐体7101を支持した構成を示している。

20

【0212】

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

【0213】

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

30

【0214】

図6(B)はコンピュータであり、本体7201、筐体7202、表示部7203、キーボード7204、外部接続ポート7205、ポインティングデバイス7206等を含む。なお、コンピュータは、発光装置をその表示部7203に用いることにより作製される。

【0215】

図6(C)は携帯型遊技機であり、筐体7301と筐体7302の2つの筐体で構成されており、連結部7303により、開閉可能に連結されている。筐体7301には表示部7304が組み込まれ、筐体7302には表示部7305が組み込まれている。また、図6(C)に示す携帯型遊技機は、その他、スピーカ部7306、記録媒体挿入部7307、LEDランプ7308、入力手段（操作キー7309、接続端子7310、センサ7311（力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、光、液、磁気、温度、化学物質、音声、時間、硬度、電場、電流、電圧、電力、放射線、流量、湿度、傾度、振動、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7312）等を備えている。もちろん、携帯型遊技機の構成は上述のものに限定されず、少なくとも表示部7304および表示部7305の両方、又は一方に発光装置を用いていればよく、その他付属設備が適宜設けられた構成とすることができます。図6(C)に示す携帯型遊技機は、記録

40

50

媒体に記録されているプログラム又はデータを読み出して表示部に表示する機能や、他の携帯型遊技機と無線通信を行って情報を共有する機能を有する。なお、図6( C )に示す携帯型遊技機が有する機能はこれに限定されず、様々な機能を有することができる。

【 0 2 1 6 】

図6( D )は、携帯電話機の一例を示している。携帯電話機7400は、筐体7401に組み込まれた表示部7402の他、操作ボタン7403、外部接続ポート7404、スピーカ7405、マイク7406などを備えている。なお、携帯電話機7400は、発光装置を表示部7402に用いることにより作製される。

【 0 2 1 7 】

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

【 0 2 1 8 】

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

【 0 2 1 9 】

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

【 0 2 2 0 】

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

【 0 2 2 1 】

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

【 0 2 2 2 】

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

【 0 2 2 3 】

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

【 0 2 2 4 】

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

【 0 2 2 5 】

表示部9631aは、一部をタッチパネルの領域9632aとすることことができ、表示された操作キー9637にふれることでデータ入力をすることができる。なお、表示部9631aにおいては、一例として半分の領域が表示のみの機能を有する構成、もう半分の領

10

20

30

40

50

域がタッチパネルの機能を有する構成を示しているが該構成に限定されない。表示部 9 6 3 1 a の全ての領域がタッチパネルの機能を有する構成としても良い。例えば、表示部 9 6 3 1 a の全面をキーボードボタン表示させてタッチパネルとし、表示部 9 6 3 1 b を表示画面として用いることができる。

【 0 2 2 6 】

また、表示部 9 6 3 1 b においても表示部 9 6 3 1 a と同様に、表示部 9 6 3 1 b の一部をタッチパネルの領域 9 6 3 2 b とすることができます。また、タッチパネルのキーボード表示切り替えボタン 9 6 3 9 が表示されている位置に指やスタイルスなどでふれることで表示部 9 6 3 1 b にキーボードボタン表示することができる。

【 0 2 2 7 】

また、タッチパネルの領域 9 6 3 2 a とタッチパネルの領域 9 6 3 2 b に対して同時にタッチ入力することもできる。

【 0 2 2 8 】

また、表示モード切り替えスイッチ 9 0 3 4 は、縦表示または横表示などの表示の向きを切り替え、白黒表示やカラー表示の切り替えなどを選択できる。省電力モード切り替えスイッチ 9 0 3 6 は、タブレット型端末に内蔵している光センサで検出される使用時の外光の光量に応じて表示の輝度を最適なものとすることができます。タブレット型端末は光センサだけでなく、ジャイロ、加速度センサ等の傾きを検出するセンサなどの他の検出装置を内蔵させててもよい。

【 0 2 2 9 】

また、図 7 ( A ) では表示部 9 6 3 1 b と表示部 9 6 3 1 a の表示面積が同じ例を示しているが特に限定されず、一方のサイズともう一方のサイズが異なっていてもよく、表示の品質も異なっていてもよい。例えば一方が他方よりも高精細な表示を行える表示パネルとしてもよい。

【 0 2 3 0 】

図 7 ( B ) は、閉じた状態であり、タブレット型端末は、筐体 9 6 3 0 、太陽電池 9 6 3 3 、充放電制御回路 9 6 3 4 、バッテリー 9 6 3 5 、D C D C コンバータ 9 6 3 6 を有する。なお、図 7 ( B ) では充放電制御回路 9 6 3 4 の一例としてバッテリー 9 6 3 5 、D C D C コンバータ 9 6 3 6 を有する構成について示している。

【 0 2 3 1 】

なお、タブレット型端末は 2 つ折り可能なため、未使用時に筐体 9 6 3 0 を閉じた状態にすることができる。従って、表示部 9 6 3 1 a 、表示部 9 6 3 1 b を保護できるため、耐久性に優れ、長期使用の観点からも信頼性の優れたタブレット型端末を提供できる。

【 0 2 3 2 】

また、この他にも図 7 ( A ) 及び図 7 ( B ) に示したタブレット型端末は、様々な情報(静止画、動画、テキスト画像など)を表示する機能、カレンダー、日付又は時刻などを表示部に表示する機能、表示部に表示した情報をタッチ入力操作又は編集するタッチ入力機能、様々なソフトウェア(プログラム)によって処理を制御する機能、等を有することができる。

【 0 2 3 3 】

タブレット型端末の表面に装着された太陽電池 9 6 3 3 によって、電力をタッチパネル、表示部、または映像信号処理部等に供給することができる。なお、太陽電池 9 6 3 3 は、表示部 9 6 3 1 a と表示部 9 6 3 1 b の一方または両方に電力を供給するバッテリー 9 6 3 5 の充電を行う構成とすることができますため好適である。なおバッテリー 9 6 3 5 としては、リチウムイオン電池を用いると、小型化を図れる等の利点がある。

【 0 2 3 4 】

また、図 7 ( B ) に示す充放電制御回路 9 6 3 4 の構成、及び動作について図 7 ( C ) にブロック図を示し説明する。図 7 ( C ) には、太陽電池 9 6 3 3 、バッテリー 9 6 3 5 、D C D C コンバータ 9 6 3 6 、コンバータ 9 6 3 8 、スイッチ SW 1 乃至 SW 3 、表示部 9 6 3 1 について示しており、バッテリー 9 6 3 5 、D C D C コンバータ 9 6 3 6 、コ

10

20

30

40

50

ンバータ 9638、スイッチ SW1 乃至 SW3 が、図7 (B) に示す充放電制御回路 9634 に対応する箇所となる。

【0235】

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

10

【0236】

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

【0237】

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

【0238】

以上のようにして、本発明の一態様である発光装置を適用して電子機器を得ることができる。発光装置の適用範囲は極めて広く、あらゆる分野の電子機器に適用することが可能である。

20

【0239】

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。

【0240】

（実施の形態 8）

本実施の形態では、本発明の一態様である複素環化合物を含む発光素子を適用して作製された発光装置を用いて完成させた照明装置の一例について、図8 を用いて説明する。

30

【0241】

図8 は、発光装置を室内の照明装置 8001 として用いた例である。なお、発光装置は大面積化も可能であるため、大面積の照明装置を形成することもできる。その他、曲面を有する筐体を用いることで、発光領域が曲面を有する照明装置 8002 を形成することもできる。本実施の形態で示す発光装置に含まれる発光素子は薄膜状であり、筐体のデザインの自由度が高い。したがって、様々な意匠を凝らした照明装置を形成することができる。さらに、室内の壁面に大型の照明装置 8003 を備えても良い。

【0242】

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

40

【0243】

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。

【0244】

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】

【0245】

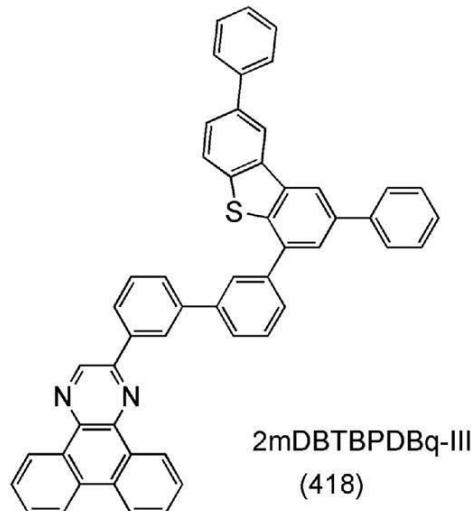
合成例 1

50

本実施例では、実施の形態1の構造式(418)で表される本発明の一態様である複素環化合物、2-[3-[2,8-ジフェニルジベンゾチオフェン-4-イル]フェニル]フェニルジベンゾ[*f*,*h*]キノキサリン(略称:2mDBTBPDBq-III)の合成方法について説明する。なお、2mDBTBPDBq-III(略称)の構造を以下に示す。

【0246】

【化41】



10

20

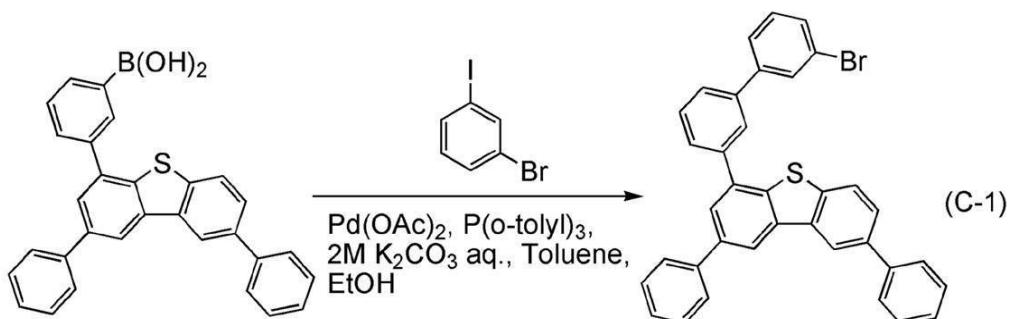
【0247】

ステップ1:4-[3-(3-プロモフェニル)フェニル]-2,8-ジフェニルジベンゾチオフェンの合成

4-[3-(3-プロモフェニル)フェニル]-2,8-ジフェニルジベンゾチオフェンの合成スキームを(C-1)に示す。

【0248】

【化42】



30

【0249】

300mL三口フラスコに6.5g(23mmol)の3-プロモヨードベンゼンと、10g(22mmol)の3-(2,8-ジフェニルジベンゾチオフェン-4-イル)フェニルボロン酸と、0.33g(1.1mmol)のトリ(オルト-トリル)ホスフィンを入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に、80mLのトルエンと、30mLのエタノールと、25mLの炭酸カリウム水溶液(2.0mol/L)を加えた。この混合物を減圧しながら攪拌することで脱気した。この混合物に49mg(0.22mmol)の酢酸パラジウム(I)を加え、窒素気流下、80°Cで3時間攪拌した。攪拌後、この混合物の水層をトルエンで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて、飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムにより乾燥し、乾燥後この混合物を自然ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た固体にトルエン/ヘキサンを加え、超音波を照射したところ、固体が

40

50

析出した。析出した固体を吸引ろ過により回収したところ、目的物の白色粉末を 1.1 g、収率 9.6 % で得た。

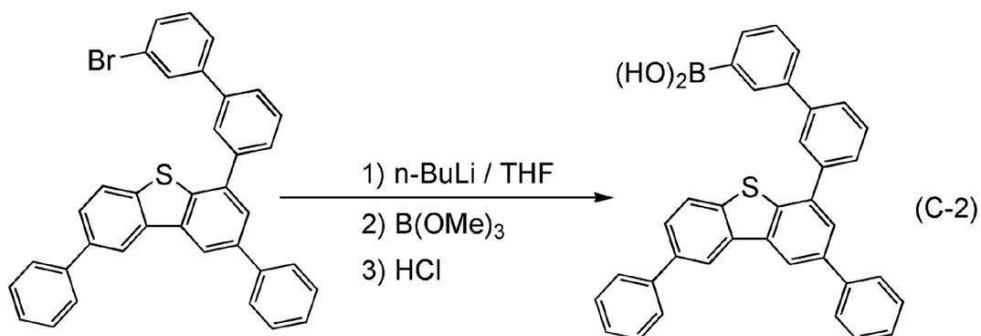
【0250】

ステップ 2 : 3 - [ 3 - ( 2 , 8 - ジフェニルジベンゾチオフェン - 4 - イル ) フェニル ] フェニルボロン酸の合成

3 - [ 3 - ( 2 , 8 - ジフェニルジベンゾチオフェン - 4 - イル ) フェニル ] フェニルボロン酸の合成スキームを ( C - 2 ) に示す。

【0251】

【化43】



10

20

【0252】

500 mL 三口フラスコに 10 g ( 1.7 mmol ) の 4 - [ 3 - ( 3 - プロモフェニル ) フェニル ] - 2 , 8 - ジフェニルジベンゾチオフェンを入れて、フラスコ内を窒素置換した。このフラスコに 176 mL のテトラヒドロフラン ( THF ) を加え、この溶液を -80 ℃ に冷却した。この溶液に 11 mL ( 1.9 mmol ) の n - プチルリチウム ( 1.6 mol / L ヘキサン溶液 ) を、シリングにより滴下して加えた。滴下終了後、この溶液を同温度で 2 時間攪拌した。攪拌後、この溶液に 2.4 mL ( 2.1 mmol ) のホウ酸トリメチルを加え、室温に戻しながら 16 時間攪拌した。攪拌後、この溶液に約 80 mL の希塩酸 ( 1.0 mol / L ) を加えて、2 時間半攪拌した。攪拌後、この水層を酢酸エチルで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液と飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムにより乾燥し、乾燥後この混合物を自然ろ過した。得られたろ液を濃縮したところ、固体を得た。得られた固体を酢酸エチル / ヘキサンで再結晶したところ、目的物の淡褐色粉末を 3.5 g、収率 37 % で得た。

30

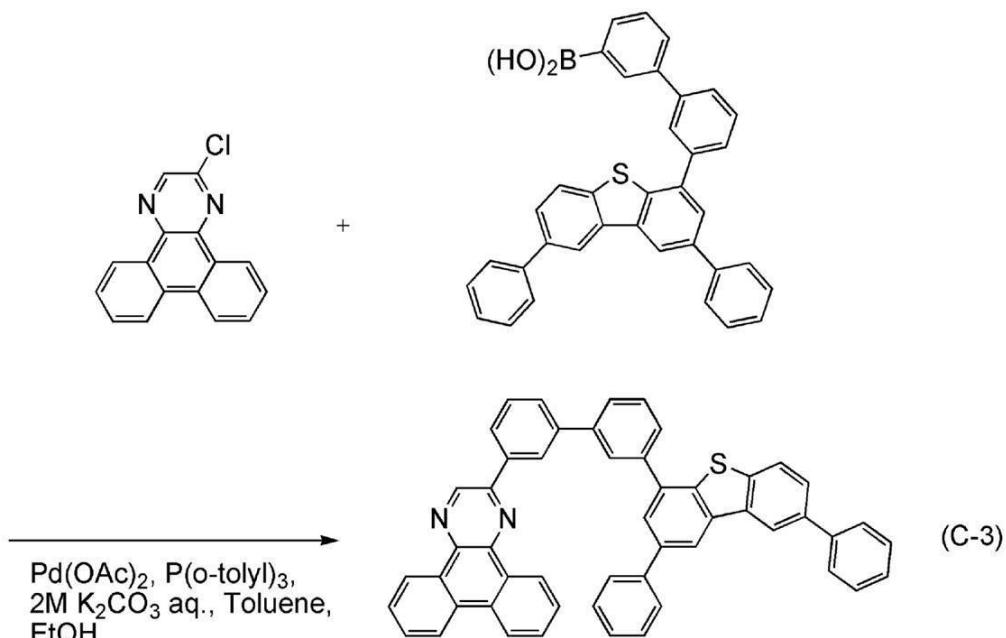
【0253】

ステップ 3 : 2 m D B T B P D B q - I I I ( 略称 ) の合成

2 m D B T B P D B q - I I I ( 略称 ) の合成スキームを ( C - 3 ) に示す。

【0254】

## 【化44】



10

20

## 【0255】

300 mL 三口フラスコに 1.7 g (6.5 mmol) の 2 - クロロジベンゾ [f, h] キノキサリンと、3.4 g (6.5 mmol) の 3 - [3 - (2,8 - ジフェニルジベンゾチオフェン - 4 - イル) フェニル ] フェニルボロン酸を入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に 43 mL のトルエンと、54 mL のエタノールと、6.5 mL の炭酸ナトリウム水溶液 (2.0 mol/L) を加えた。この混合物を減圧しながら攪拌することで脱気した。この混合物に 75 mg (0.065 mmol) のテトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (0) を加え、窒素気流下、80 で 4 時間攪拌したところ、固体が析出した。攪拌後、この混合物に 200 mL の水を加え、30 分攪拌した。攪拌後、この混合物を吸引ろ過し、固体を得た。得られた固体に 200 mL のエタノールを加え、超音波を照射して固体を洗浄した。洗浄後、この混合物を吸引ろ過し、固体を得た。得られた固体を減圧乾燥し、乾燥後この固体を 800 mL の熱したトルエンに溶解し、この溶液をセライト、アルミナを通して吸引ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒 ヘキサン : トルエン = 2 : 1) で精製して固体を得た。得られた固体を HPLC で精製して固体を得た。得られた固体を減圧乾燥したところ、目的物の白色固体を 0.72 g、収率 15 % で得た。

30

## 【0256】

得られた白色固体 0.72 g をトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製条件は、圧力 2.8 Pa、アルゴンガスを流量 5.0 mL/min で流しながら、360 で 2 mDBTBPD Bq - III (略称) を加熱した。昇華精製後、2 mDBTBPD Bq - III (略称) の白色固体を 0.61 g、回収率 84 % で得た。

40

## 【0257】

上記合成法で得られた化合物の核磁気共鳴分光法 (<sup>1</sup>H - NMR) による分析結果を下記に示す。また、<sup>1</sup>H - NMR チャートを図 9 に示す。この結果から、上述の構造式 (418) で表される本発明の一態様の複素環化合物である 2 mDBTBPD Bq - III (略称) が得られたことがわかった。

## 【0258】

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>, 500 MHz) : δ = 7.39 - 7.43 (m, 2H)、7.52 (ddd, J = 8.0、1.7 Hz, 4H)、7.66 - 7.90 (m, 16H)、8.23 (t, J = 1.7 Hz, 1H)、8.34 (d, J = 2.4 Hz, 1H)、8.46 (dd, J = 6.3、1.7 Hz, 2H)、8.65 (d, J = 8.0 Hz, 2

50

H)、8.71(t, J = 1.7 Hz, 1H)、9.25(dd, J = 5.0, 1.1 Hz, 1H)、9.44(dd, J = 3.0, 1.1 Hz, 1H)、9.47(s, 1H)。

#### 【0259】

次に、本実施例で得られた2mDBTBPDBq-II (略称)を液体クロマトグラフ質量分析(Liquid Chromatography Mass Spectrometry, 略称: LC/MS分析)によって分析した。

#### 【0260】

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

10

#### 【0261】

MS分析では、エレクトロスプレーイオン化法(Electrospray Ionization, 略称: ESI)によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は3.0 kV、サンプルコーン電圧は30 Vとし、検出はポジティブモードで行った。

#### 【0262】

さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室(コリジョンセル)内でアルゴンガスと衝突させて複数のプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー(コリジョンエネルギー)は70 eVとした。なお、測定する質量範囲はm/z = 100 ~ 1200とした。

#### 【0263】

20

測定結果を図19に示す。図19の結果から、構造式(418)で表される本発明の一態様である複素環化合物、2mDBTBPDBq-II (略称)は、主としてm/z = 690付近、m/z = 229付近、m/z = 202付近、m/z = 177付近、m/z = 165付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。

#### 【0264】

なお、図19に示す結果は、2mDBTBPDBq-II (略称)に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる2mDBTBPDBq-II (略称)を同定する上で重要なデータであるといえる。

#### 【0265】

なお、m/z = 690付近のプロダクトイオンは、構造式(418)の化合物におけるジベンゾ[f, h]キノキサリン環からC原子とN原子が一つずつ離脱した状態のカチオンと推定され、本発明の一態様である複素環化合物の特徴の一つである。また、m/z = 229付近のプロダクトイオンは、ジベンゾ[f, h]キノキサリンのようなジアザトリフェニレニル基のカチオンと推定されるが、他のm/z = 202付近、m/z = 177付近、m/z = 165付近のプロダクトイオンも同時に検出されており、本発明の一態様である複素環化合物2mDBTBPDBq-II (略称)が、ジベンゾ[f, h]キノキサリン環を含んでいることを示唆するものである。

30

#### 【実施例2】

#### 【0266】

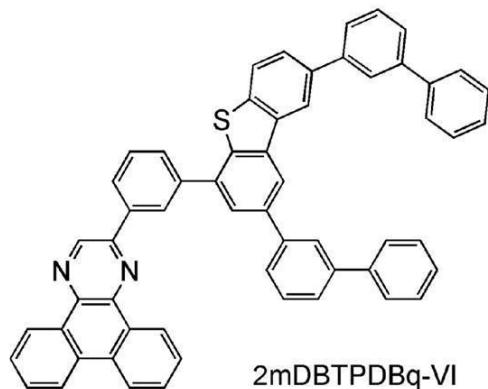
##### 合成例2

本実施例では、実施の形態1の構造式(400)で表される本発明の一態様である複素環化合物、2-[3-[2,8-ビス(フェニル-3-イル)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-VI)の合成方法について説明する。なお、2mDBTPDBq-VI (略称)の構造を以下に示す。

40

#### 【0267】

## 【化45】



10

(400)

## 【0268】

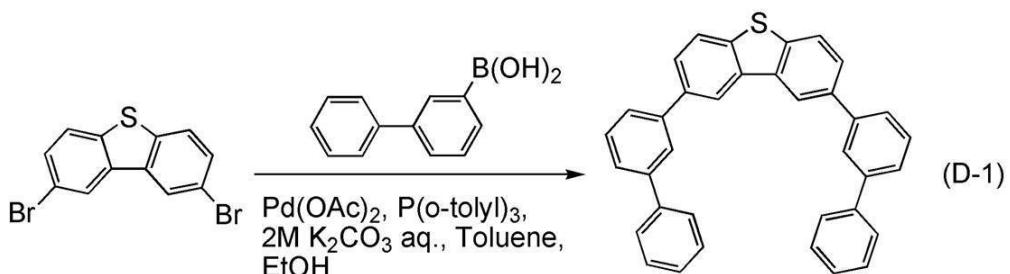
ステップ1：2,8-ビス(ビフェニル-3-イル)ジベンゾチオフェンの合成

2,8-ビス(ビフェニル-3-イル)ジベンゾチオフェンの合成スキームを(D-1)に示す。

## 【0269】

## 【化46】

20



## 【0270】

30

3.0 L三口フラスコに50g(0.14mol)の2,8-ジプロモジベンゾチオフェンと、69g(0.35mmol)の3-ビフェニルボロン酸と、4.4g(14mmol)のトリ(オルト-トリル)ホスフィンと、60g(0.43mol)の炭酸カリウムと、380mLの水と、1.2Lのトルエンと、120mLのエタノールを加えた。この混合物を減圧しながら攪拌することで脱気した。この混合物に0.65g(2.9mmol)の酢酸パラジウム(I)を加え、窒素気流下、80で3時間攪拌した。攪拌後、この混合物の水層をトルエンで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて、飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムにより乾燥し、この混合物を自然ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た固体を約500mLのトルエンに溶解し、この溶液をセライト、アルミナ、フロリジールを通して吸引ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た固体にトルエン/ヘキサンを加えて超音波を照射して洗浄し、この固体を吸引ろ過により回収した所、目的物の白色粉末を60g、收率84%で得た。

40

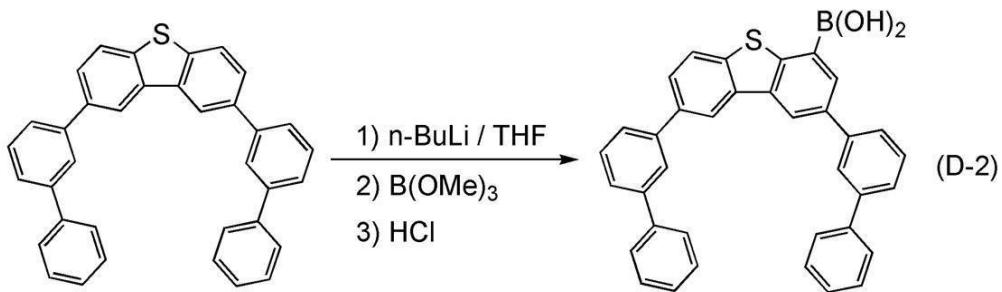
## 【0271】

ステップ2：2,8-ビス(ビフェニル-3-イル)ジベンゾチオフェン-4-イルボロン酸の合成

2,8-ビス(ビフェニル-3-イル)ジベンゾチオフェン-4-イルボロン酸の合成スキームを(D-2)に示す。

## 【0272】

## 【化47】



10

## 【0273】

2.0 L 三口フラスコに 36 g (73 mmol) の 2,8-ビス(ビフェニル-3-イル)ジベンゾチオフェンを入れて、フラスコ内を窒素置換した。このフラスコに 370 mL のテトラヒドロフラン (THF) を加え、この溶液を -80℃ に冷却した。この溶液に 50 mL (80 mmol) の n-ブチルリチウム (1.6 mol/L ヘキサン溶液) を、滴下ロートにより滴下して加えた。滴下終了後、この溶液を室温に戻しながら 2 時間攪拌した。攪拌後、この溶液を再び -80℃ まで冷却し、この溶液に 11 mL (100 mmol) のホウ酸トリメチルを加え、室温に戻しながら 18 時間攪拌した。攪拌後、この溶液に約 200 mL の希塩酸 (1.0 mol/L) を加えて、1 時間攪拌した。攪拌後、この混合物の水層を酢酸エチルで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液と飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムにより乾燥し、乾燥後この混合物を自然ろ過した。得られたろ液を濃縮したところ固体を得た。得られた固体に酢酸エチル / トルエンを加えて超音波を照射し、固体を吸引ろ過により回収した所、目的物の白色粉末を 33 g、収率 87% で得た。

20

## 【0274】

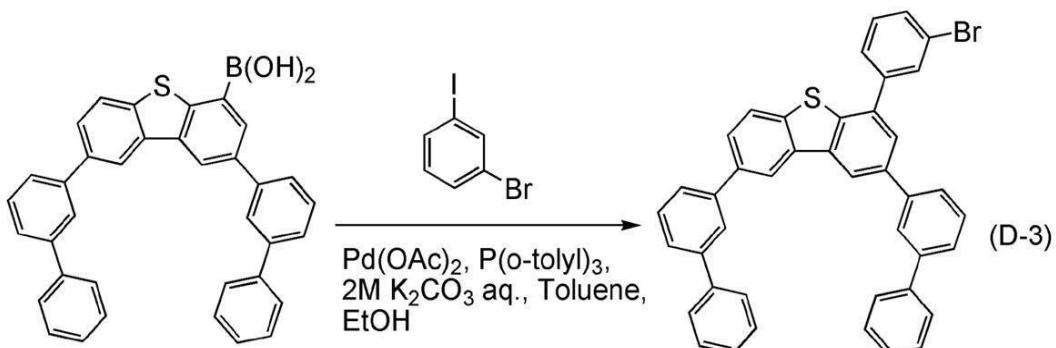
ステップ 3 : 4-(3-ブロモフェニル)-2,8-ビス(ビフェニル-3-イル)ジベンゾチオフェンの合成

4-(3-ブロモフェニル)-2,8-ビス(ビフェニル-3-イル)ジベンゾチオフェンの合成スキームを (D-3) に示す。

## 【0275】

30

## 【化48】



40

## 【0276】

1.0 L 三口フラスコに 4.8 mL (37 mmol) の 3-ブロモヨードベンゼンと、20 g (37 mmol) の 2,8-ビス(ビフェニル-3-イル)ジベンゾチオフェン-4-イルボロン酸と、1.5 g (5.6 mmol) のトリ(オルト-トリル)ホスフィンを入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に 140 mL のトルエンと、47 mL のエタノールと、10 g の炭酸カリウムと、37 mL の水を加えた。この混合物を減圧しながら攪拌することで脱気した。この混合物に 0.16 g (1.1 mmol) の酢酸パラジウム (II) を加え、窒素気流下、80℃ で 6 時間攪拌した。攪拌後、この混合物の水層をトルエンで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて、飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫

50

酸マグネシウムにより乾燥し、この混合物を自然ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た油状物にトルエン / メタノールを加えて超音波を照射したところ、固体が析出した。析出した固体を吸引ろ過により回収したところ、目的物の淡褐色固体を 2.2 g、収率 9.4 % で得た。

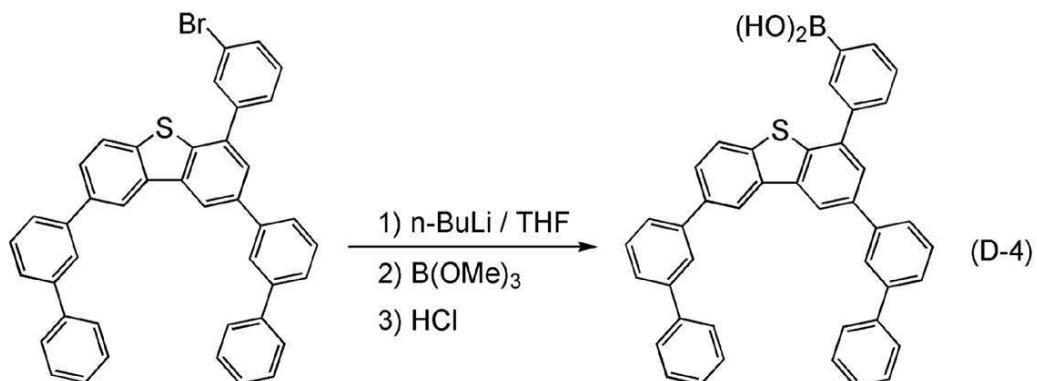
## 【0277】

ステップ 4 : 3 - [ 2 , 8 - ビス ( ピフェニル - 3 - イル ) ジベンゾチオフェン - 4 - イル ] フェニルボロン酸の合成

3 - [ 2 , 8 - ビス ( ピフェニル - 3 - イル ) ジベンゾチオフェン - 4 - イル ] フェニルボロン酸の合成スキームを ( D - 4 ) に示す。

## 【0278】

## 【化49】



## 【0279】

500 mL 三口フラスコに 20 g ( 31 mmol ) の 4 - ( 3 - プロモフェニル ) - 2 , 8 - ビス ( ピフェニル - 3 - イル ) ジベンゾチオフェンを入れて、フラスコ内を窒素置換した。このフラスコに 310 mL のテトラヒドロフラン ( THF ) を加え、この溶液を - 80 ℃ に冷却した。この溶液に 21 mL ( 34 mmol ) の n - ブチルリチウム ( 1 . 6 mol / L ヘキサン溶液 ) を、シリングにより滴下して加えた。滴下終了後、この溶液を同温度で 2 時間攪拌した。攪拌後、この溶液に 4 . 2 mL ( 37 mmol ) のホウ酸トリメチルを加え、室温に戻しながら 18 時間攪拌した。攪拌後、この溶液に約 10 mL の希塩酸 ( 1 . 0 mol / L ) を加えて、1 時間攪拌した。攪拌後、この水層を酢酸エチルで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液と、飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムにより乾燥し、乾燥後この混合物を自然ろ過した。得られたろ液を濃縮したところ、固体を得た。得られた固体を熱した酢酸エチルに溶解し、ヘキサンを加えて再結晶したところ、目的物の淡褐色粉末を 1.2 g、収率 6.3 % で得た。

## 【0280】

ステップ 5 : 2mDBTPDBq - VI ( 略称 ) の合成

2mDBTPDBq - VI ( 略称 ) の合成スキームを ( D - 5 ) に示す。

## 【0281】

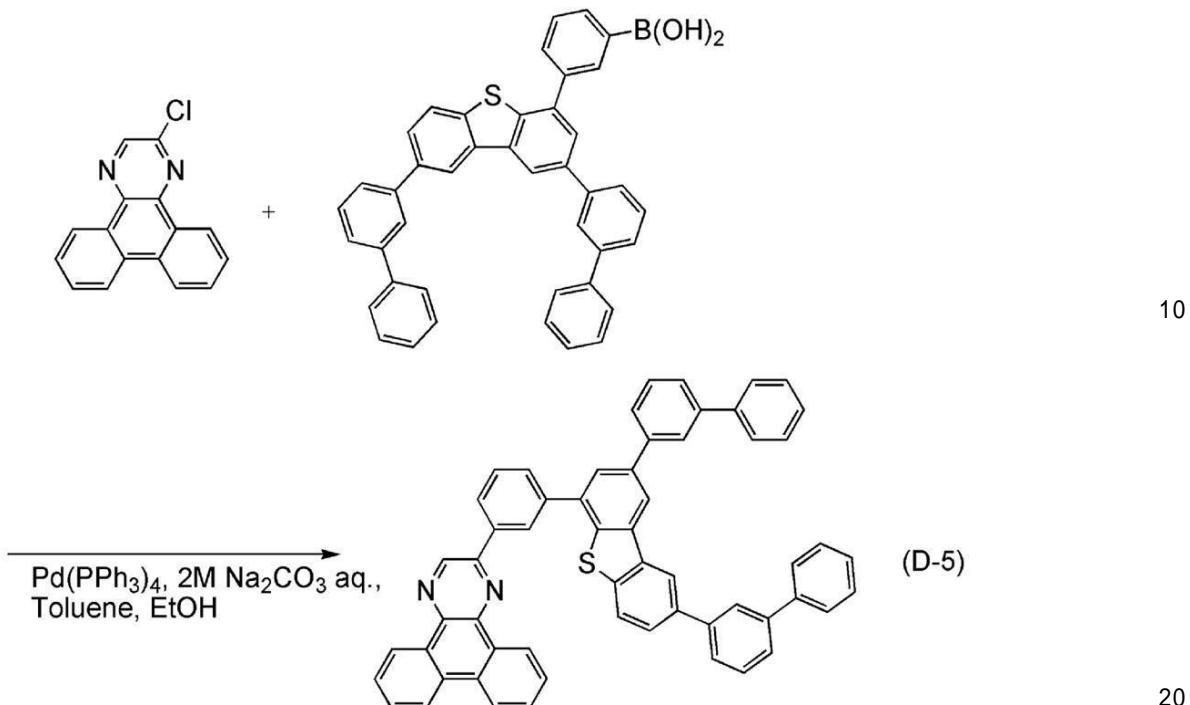
10

20

30

40

## 【化 5 0】



## 【0282】

300 mL 三口フラスコに 5.1 g (19 mmol) の 2 - クロロジベンゾ [f, h] キノキサリンと、12 g (2.4 mmol) の 3 - [2,8 - ビス (ビフェニル - 3 - イル) ジベンゾチオフェン - 4 - イル] フェニルボロン酸と、130 mL のトルエンと、13 mL のエタノールと、20 mL の炭酸ナトリウム水溶液 (2.0 mol/L) を加えた。この混合物を減圧しながら攪拌することで脱気した。この混合物に 0.23 g (0.20 mmol) の テトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (0) を加え、窒素気流下、80 で 3 時間半攪拌したところ、固体が析出した。攪拌後、この混合物に 200 mL の水を加え、室温で 30 分攪拌した。攪拌後、この混合物を吸引ろ過し、固体を得た。得られた固体に 200 mL のエタノールを加え、超音波を照射して固体を洗浄した。洗浄後、この混合物を吸引ろ過し、固体を得た。得られた固体を減圧乾燥し、乾燥後、この固体を 800 mL の熱したトルエンに溶解し、この溶液をセライト、アルミナを通して吸引ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た固体を減圧乾燥したところ、目的物の白色粉末を 7.2 g、収率 46 % で得た。

## 【0283】

得られた白色粉末状固体 7.2 g をトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製条件は、圧力 3.5 Pa、アルゴンガスを流量 15 mL/min で流しながら、395 で 2 mDBTPDBq - VI (略称) を加熱した。昇華精製後、2 mDBTPDBq - VI (略称) の白色固体を 6.2 g、回収率 86 % で得た。

## 【0284】

上記合成法で得られた化合物の核磁気共鳴分光法 (<sup>1</sup>H - NMR) による分析結果を下記に示す。また、<sup>1</sup>H - NMR チャートを図 10 に示す。この結果から、上述の構造式 (400) で表される本発明の一態様の複素環化合物である 2 mDBTPDBq - VI (略称) が得られたことがわかった。

## 【0285】

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>, 500 MHz) : δ = 7.38 (ddd, J = 8.6, 7.5 Hz, 2H)、7.48 (ddd, J = 8.1, 7.4 Hz, 4H)、7.59 - 7.66 (m, 4H)、7.70 - 7.82 (m, 12H)、7.95 - 7.99 (m, 4H)、8.02 (dd, J = 1.7 Hz, 1H)、8.46 (d, J = 8.0 Hz, 1H)

30

40

50

)、8.53(d、J = 1.8 Hz、2H)、8.65(d、J = 8.0 Hz、2H)、8.87(dd、J = 1.7 Hz、1H)、9.25(dd、J = 6.3、1.7 Hz、1H)、9.45(dd、J = 6.8、1.2 Hz、1H)、9.51(s、1H)。

【0286】

次に、本実施例で得られた2mDBTPDBq-VI(略称)を液体クロマトグラフ質量分析(Liquid Chromatography Mass Spectrometry, 略称: LC/MS分析)によって分析した。

【0287】

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

10

【0288】

MS分析では、エレクトロスプレーイオン化法(Electrospray Ionization, 略称: ESI)によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は3.0 kV、サンプルコーン電圧は30 Vとし、検出はポジティブモードで行った。

【0289】

さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室(コリジョンセル)内でアルゴンガスと衝突させて複数のプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー(コリジョンエネルギー)は70 eVとした。なお、測定する質量範囲はm/z = 100 ~ 1200とした。

【0290】

20

測定結果を図20に示す。図20の結果から、構造式(400)で表される本発明の一態様である複素環化合物、2mDBTPDBq-VI(略称)は、主としてm/z = 766付近、m/z = 229付近、m/z = 165付近にプロダクトイオンが検出されたことがわかった。

【0291】

なお、図20に示す結果は、2mDBTPDBq-VI(略称)に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる2mDBTPDBq-VI(略称)を同定する上で重要なデータであるといえる。

【0292】

なお、m/z = 766付近のプロダクトイオンは、構造式(400)の化合物におけるジベンゾ[f, h]キノキサリン環からC原子とN原子が一つずつ離脱した状態のカチオンと推定され、本発明の一態様である複素環化合物の特徴の一つである。また、m/z = 229付近のプロダクトイオンは、ジベンゾ[f, h]キノキサリンのようなジアザトリフェニレニル基のカチオンと推定されるが、他のm/z = 202付近、m/z = 177付近、m/z = 165付近のプロダクトイオンも同時に検出されており、本発明の一態様である複素環化合物2mDBTPDBq-VI(略称)が、ジベンゾ[f, h]キノキサリン環を含んでいることを示唆するものである。

30

【0293】

また、本発明の一態様である2mDBTPDBq-VI(略称)を飛行時間二次イオン質量分析計(Time-of-flight secondary ion mass spectrometer: TOF-SIMS)にて測定した正イオンの場合の定性スペクトルについて、図31に示す。

40

【0294】

装置は、TOF SIMS5(ION TOF社製)、一次イオン源はBi<sub>3</sub><sup>++</sup>を用いた。なお、一次イオンは、パルス幅7 ~ 12 nmのパルス状に照射し、その照射量は8.2 × 10<sup>10</sup> ions/cm<sup>2</sup>以上6.7 × 10<sup>11</sup> ions/cm<sup>2</sup>以下(1 × 10<sup>12</sup> ions/cm<sup>2</sup>以下)、加速電圧は25 keV、電流値は0.2 pAとした。試料は2mDBTPDBq-VI(略称)の粉末を用いて測定した。

【0295】

図31のTOF-SIMS分析(正イオン)の結果から、構造式(400)で表される

50

本発明の一態様である複素環化合物、2mDBTPDBq-VI（略称）（m/z = 792.26）は、主としてm/z = 176付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、ここでいう付近とは、水素イオンや同位体の存在の有無により変化するプロダクトイオンの数値の差を許容範囲とすることを意味するものとする。また、図31に示す結果は、図20で示したMS分析（正イオン）により得られる2mDBTPDBq-VI（略称）のプロダクトイオンと類似するプロダクトイオンが得られることから、TOF-SIMSによる測定結果も同様に混合物中に含まれる2mDBTPDBq-VI（略称）を同定する上で重要なデータであるといえる。

【実施例3】

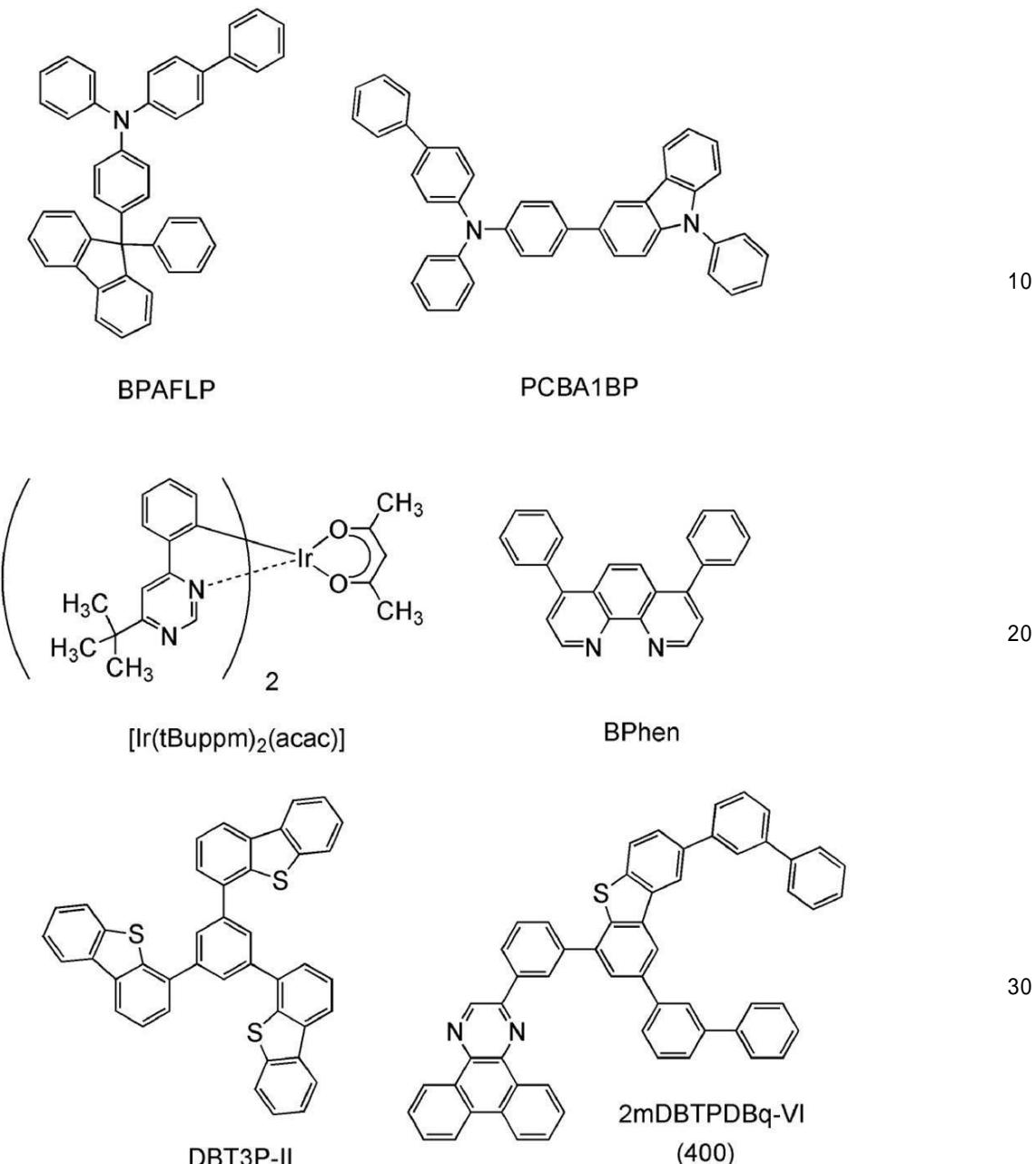
【0296】

10

本実施例では、本発明の一態様である複素環化合物、2-[3-[2,8-ビス（ビフェニル-3-イル）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-VI）（構造式（400））を発光層の一部に用いた発光素子1について図11を用いて説明する。なお、本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

【0297】

## 【化51】



## 【0298】

## 発光素子1の作製

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

## 【0299】

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

## 【0300】

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

## 【0301】

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

【0302】

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

【0303】

次に、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン(略称: BPAFLP)を 20 nm 蒸着することにより、正孔輸送層1112を形成した。

【0304】

次に、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。まず、2-[3-[2,8-ビス(ビフェニル-3-イル)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-VI)、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)、(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(tBu<sub>2</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)])を、2mDBTPDBq-VI(略称): PCBA1BP(略称): [Ir(tBu<sub>2</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)](略称) = 0.8:0.2:0.05(質量比)となるように共蒸着した。なお、膜厚は、40 nm とした。以上により、発光層1113を形成した。

【0305】

次に、発光層1113上に 2mDBTPDBq-VI(略称)を蒸着し、膜厚を 10 nm とした後、バソフェナントロリン(略称: Bphen)を 20 nm 蒸着することにより、積層構造を有する電子輸送層1114を形成した。さらに電子輸送層1114上にフッ化リチウムを 1 nm 蒸着することにより、電子注入層1115を形成した。

【0306】

最後に、電子注入層1115上にアルミニウムを 200 nm の膜厚となるように蒸着し、陰極となる第2の電極1103形成し、発光素子1を得た。なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【0307】

以上により得られた発光素子1の素子構造を表1に示す。

【0308】

【表1】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子1	ITSO(110nm)	DBT3P-II:MoO <sub>x</sub> (4:2 40nm)	BPAFLP(20nm)	*1	**1	Bphen(20nm)	LiF(1nm) Al(200nm)

\*1 2mDBTPDBq-VI: PCBA1BP: [Ir(tBu<sub>2</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)] (0.8:0.2:0.05 40nm)

\*\*1 2mDBTPDBq-VI(10nm)

【0309】

また、作製した発光素子1は、大気に曝されないように窒素雰囲気のグローブボックス内において封止した(シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に 80 °C にて 1 時間熱処理)。

10

20

30

40

50

## 【0310】

## 発光素子1の動作特性

作製した発光素子1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。

## 【0311】

まず、発光素子1の電流密度-輝度特性を図12、電圧-輝度特性を図13、輝度-電流効率特性を図14にそれぞれ示す。

## 【0312】

図14より、本発明の一態様の複素環化合物を発光層の一部にホスト材料として用いた発光素子1は、低消費電力で高効率な素子であることがわかった。

10

## 【0313】

また、1000cd/m<sup>2</sup>付近における発光素子1の主な初期特性値を以下の表2に示す。

## 【0314】

## 【表2】

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度(x,y)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)	外部量子効率 (%)
発光素子1	3.1	0.068	1.7	(0.42, 0.56)	1100	63	64	18

20

## 【0315】

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

## 【0316】

また、発光素子1に0.1mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で電流を流した際の発光スペクトルを、図15に示す。図15に示す通り、発光素子1の発光スペクトルは544nm付近にピークを有しており、発光層1113に含まれる[Ir(tBu<sub>3</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)](略称)の発光に由来していることがわかった。

## 【0317】

30

従って、2mDBTPDBq-VI(略称)は、高いT<sub>1</sub>準位を有し、可視域(青色から長波長)の燐光を呈する素子のホスト材料やキャリア輸送材料に用いることができることがわかった。

## 【実施例4】

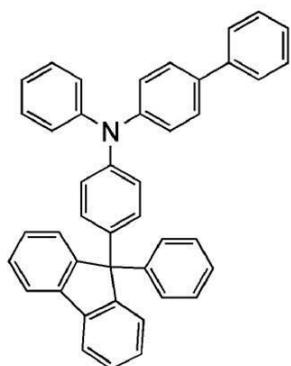
## 【0318】

本実施例では、本発明の一態様である複素環化合物、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:2mDBTPDBq-II)(構造式(103))を発光層の一部に用いた発光素子2、2-[3-(2,8-ジフェニル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-II)(構造式(113))を発光層の一部に用いた発光素子3、および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-II)(構造式(600))を発光層の一部に用いた比較発光素子について説明する。なお、本実施例における発光素子2、発光素子3、および比較発光素子の説明には、実施例3で発光素子1の説明に用いた図11を用いることとする。また、本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

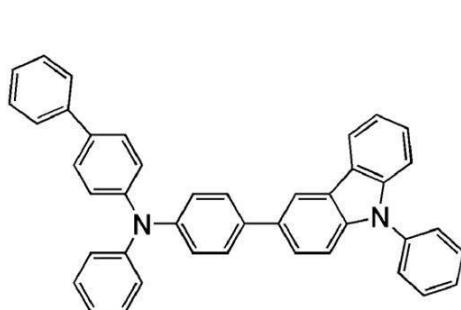
40

## 【0319】

【化 5 2】

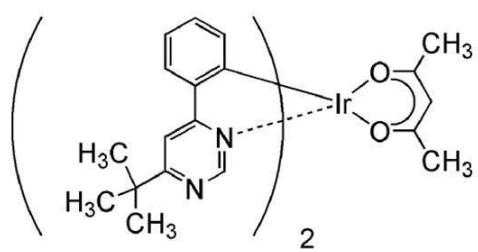
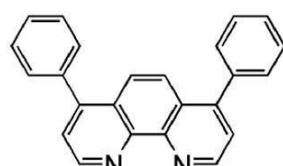


BPAFLP



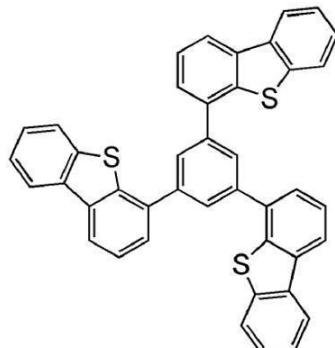
PCBA1BP

10

[Ir(tBu<sub>2</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)]

BPhen

20

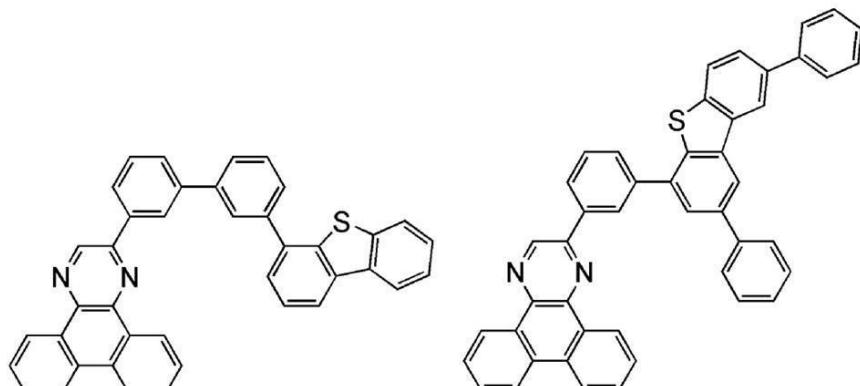


DBT3P-II

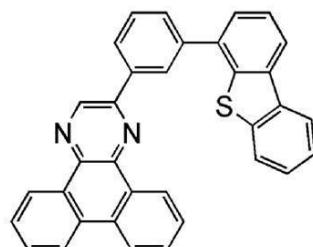
30

【0 3 2 0】

## 【化 5 3】



10



2mDBTPDBq-II  
(600)

20

## 【0 3 2 1】

発光素子 2 、発光素子 3 、および比較発光素子の作製

30

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

## 【0 3 2 2】

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

## 【0 3 2 3】

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

40

## 【0 3 2 4】

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

## 【0 3 2 5】

真空装置内を  $10^{-4}$  Pa に減圧した後、1,3,5-トリ(ジベンゾチオフェン-4-イル)ベンゼン (略称: DBT3P-II) と酸化モリブデン (VI) とを、DBT3P-II (略称) : 酸化モリブデン = 1 : 0.5 (質量比) となるように共蒸着することにより、第 1 の電極 1101 上に正孔注入層 1111 を形成した。膜厚は 40 nm とした

50

。なお、共蒸着とは、異なる複数の物質をそれぞれ異なる蒸発源から同時に蒸発させる蒸着法である。

【0326】

次に、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン(略称: BPAFLP)を20nm蒸着することにより、正孔輸送層1112を形成した。なお、ここまで作製は、発光素子2、発光素子3、および比較発光素子のいずれも共通である。

【0327】

次に、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。

【0328】

まず、発光素子2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: 2mDBTPDBq-II)、4-フェニル-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン(略称: PCBA1BP)、及び(アセチルアセトナト)ビス(6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称: [Ir(tBu ppm)<sub>2</sub>(acac)])を、2mDBTPDBq-II(略称: PCBA1BP(略称): [Ir(tBu ppm)<sub>2</sub>(acac)]) = 0.8:0.2:0.05(質量比)となるように共蒸着した。なお、膜厚は、40nmとした。以上により、発光層1113を形成した。

【0329】

発光素子3は、2-[3-(2,8-ジフェニル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-II)、PCBA1BP(略称)、及び[Ir(tBu ppm)<sub>2</sub>(acac)](略称)を、2mDBTPDBq-II(略称: PCBA1BP(略称): [Ir(tBu ppm)<sub>2</sub>(acac)]) = 0.8:0.2:0.05(質量比)となるように共蒸着した。なお、膜厚は、40nmとした。以上により、発光層1113を形成した。

【0330】

比較発光素子は、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-II)、PCBA1BP(略称)、及び[Ir(tBu ppm)<sub>2</sub>(acac)](略称)を、2mDBTPDBq-II(略称: PCBA1BP(略称): [Ir(tBu ppm)<sub>2</sub>(acac)]) = 0.8:0.2:0.05(質量比)となるように共蒸着した。なお、膜厚は、40nmとした。以上により、発光層1113を形成した。

【0331】

次に、発光素子2、発光素子3、および比較発光素子のそれぞれの発光層1113上に2mDBTPDBq-II(略称)を蒸着し、膜厚を10nmとした後、バソフェナントロリン(略称: Bphen)を20nm蒸着することにより、積層構造を有する電子輸送層1114を形成した。さらに電子輸送層1114上にフッ化リチウムを1nm蒸着することにより、電子注入層1115を形成した。

【0332】

最後に、電子注入層1115上にアルミニウムを200nmの膜厚となるように蒸着し、陰極となる第2の電極1103形成し、発光素子2、発光素子3、および比較発光素子を得た。なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【0333】

なお、発光層1113形成後の作製方法は、発光素子2、発光素子3、および比較発光素子のいずれも同様の方法で作製した。

【0334】

以上により得られた発光素子2、発光素子3、および比較発光素子の素子構造を表3に示す。

【0335】

10

20

30

40

50

【表3】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子2	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoOx (1:0.5 40nm)	BPAFLP (20nm)	*2	**2	Bphen (20nm)	LiF(1nm) Al (200nm)
発光素子3	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoOx (1:0.5 40nm)	BPAFLP (20nm)	*3	**3	Bphen (20nm)	LiF(1nm) Al (200nm)
比較 発光素子	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoOx (1:0.5 40nm)	BPAFLP (20nm)	*0	**0	Bphen (20nm)	LiF(1nm) Al (200nm)

\*2 2mDBTPDBq-II: PCBA1BP: [Ir(tBu<sub>4</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)] (0.8:0.2:0.05 40nm)

\*\*2 2mDBTPDBq-II (10nm)

\*3 2mDBTPDBq-III: PCBA1BP: [Ir(tBu<sub>4</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)] (0.8:0.2:0.05 40nm)

\*\*3 2mDBTPDBq-III (10nm)

\*0 2mDBTPDBq-II: PCBA1BP: [Ir(tBu<sub>4</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)] (0.8:0.2:0.05 40nm)

\*\*0 2mDBTPDBq-II (10nm)

### 【0336】

また、作製した発光素子2、発光素子3、および比較発光素子は、大気に曝されないように窒素雰囲気のグローブボックス内において封止した（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に80にて1時間熱処理）。

### 【0337】

発光素子2、発光素子3、および比較発光素子の耐熱特性

作製した発光素子2、発光素子3、および比較発光素子の耐熱性試験を行った。評価は、80に保たれた恒温槽で各発光素子を保存し、所定の時間経過した後、電流効率を測定することにより行った。なお、電流効率の測定は、恒温槽から取り出した後、室温（25に保たれた雰囲気）で行った。

### 【0338】

まず、80で1090時間保存した後の各発光素子の電流効率の測定結果を、図16～図17に示す。図16は、発光素子2（2mDBTPDBq-II；ベンゼン環が2個）と比較発光素子（2mDBTPDBq-II；ベンゼン環が1個）を比較したものである。また、図17は、発光素子3（2mDBTPDBq-III；ベンゼン環が3個）と比較発光素子（2mDBTPDBq-II；ベンゼン環が1個）を比較したものである。

### 【0339】

これらの測定結果からわかるように、発光素子2や発光素子3は、80で1000時間以上保存したにも関わらず、電流効率の劣化は非常に小さい。一方で、比較発光素子は、電流効率が大きく劣化しており、電流のリークが示唆される。

### 【0340】

本実施例の保存試験結果を図18にまとめた。図18の横軸は、80での保存時間である。また縦軸は、1,000 [cd/m<sup>2</sup>] の輝度における各素子の電流効率を、保存試験前を100（%）として規格化した数値である。この結果から、ベンゼン環が1個しか存在しない2mDBTPDBq-IIを用いた比較発光素子と、ベンゼン環が2個以上存在する発光素子2および3とでは、高温保存試験における挙動が極端に変わっていることがわかる。すなわち、前者では大きな特性劣化が生じるが、後者ではほとんど特性が劣化しない。

### 【0341】

本発明の一態様である複素環化合物のような1つのジベンゾ[f,h]キノキサリン環、1つの正孔輸送性骨格を有する環、およびベンゼン環を含む化合物は、真空蒸着で均質な膜が形成できるため、真空蒸着による成膜に適している。しかしながら、ガラス転移温

10

20

30

40

50

度 (  $T_g$  ) が観測されないため、これまで、化合物中のどの部分の骨格が耐熱性に効果をもたらしているのか不明であった。すなわち、ベンゼン環の数の違いによって、 $T_g$  がどの程度異なるのかを判断することが困難であった。しかしながら、本発明で開示するよう 10 に本発明の一態様である複素環化合物の構造の場合においては、ベンゼン環の数が 1 個の場合と 2 個以上の場合で、形成した膜の耐熱性にしきい値的な差が生じることを見出したため、本発明の一態様である複素環化合物は、ベンゼン環の数に特徴を有する構造とすることで、従来よりも耐熱性に優れた新規の複素環化合物を得ることができた。

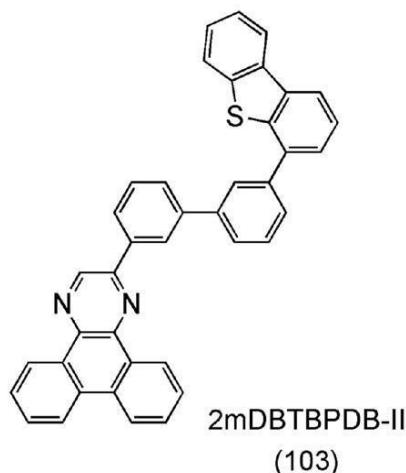
【 0 3 4 2 】

(参考合成例 1 )

上記実施例 4 で用いた下記構造式 ( 103 ) に示される 2 - [ 3 ' - ( ジベンゾチオフェン - 4 - イル ) ピフェニル - 3 - イル ] ジベンゾ [ f, h ] キノキサリン ( 略称 : 2mDBTBPDB-II ) の合成方法の一例について説明する。

【 0 3 4 3 】

【 化 5 4 】



【 0 3 4 4 】

2mDBTBPDB-II ( 略称 ) の合成

2mDBTBPDB-II ( 略称 ) の合成スキームを ( E - 1 ) に示す。

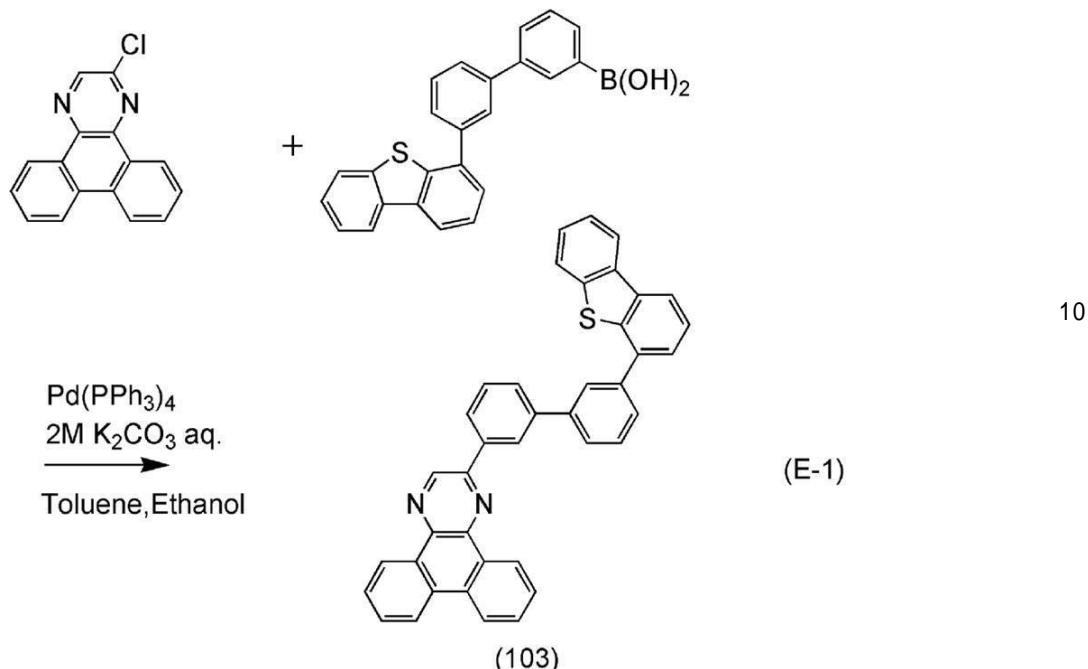
【 0 3 4 5 】

10

20

30

## 【化55】



## 【0346】

200 mL 三口フラスコに 2 - クロロジベンゾ [ f、h ] キノキサリン 0.83 g ( 3.2 mmol ) 、 3 ' - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル) - 3 - ビフェニルボロン酸 1.3 g ( 3.5 mmol ) 、トルエン 40 mL 、エタノール 4 mL 、 2 M の炭酸カリウム水溶液 5 mL を加えた。この混合物を、減圧下で攪拌することで脱気し、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム ( 0 ) 80 mg ( 70  $\mu$ mol ) を加えた。この混合物を窒素気流下、80 で 16 時間攪拌した。所定時間経過後、析出した固体を濾別し、黄色固体を得た。この固体にエタノールを加えて超音波を照射し、吸引濾過にて固体を得た。得られた固体をトルエンに溶解し、該トルエン溶液をアルミナ、セライト ( 和光純薬工業株式会社、カタログ番号 : 531-16855 ) を通して吸引濾過し、得られた濾液を濃縮して黄色固体を得た。さらに、この固体をトルエンにより再結晶を行ったところ、収量 1.1 g 、収率 57 % で黄色粉末を得た。

30

## 【0347】

得られた黄色粉末 1.1 g をトレ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 6.2 Pa 、アルゴン流量 15 mL / min の条件で、黄色粉末を 300 で加熱して行った。昇華精製後、目的物の黄色粉末を収量 0.80 g 、収率 73 % で得た。

## 【0348】

核磁気共鳴法 ( NMR ) によって、この化合物が目的物である 2mDBTBPD Bq - II ( 略称 ) であることを確認した。

40

## 【0349】

得られた物質の  $^1$  H NMR データを以下に示す。

$^1$  H NMR ( CDCl<sub>3</sub> , 300 MHz ) : δ = 7.46 - 7.50 ( m , 2 H ) , 7.61 ( d , J = 4.5 Hz , 2 H ) , 7.67 - 7.89 ( m , 10 H ) , 8.17 - 8.24 ( m , 3 H ) , 8.35 ( d , J = 8.1 Hz , 1 H ) , 8.65 - 8.70 ( m , 3 H ) , 9.24 - 9.27 ( m , 1 H ) , 9.44 - 9.48 ( m , 2 H ) 。

## 【0350】

なお、上述した参考合成例 1 で得られた 2mDBTBPD Bq - II ( 略称 ) を液体クロマトグラフ質量分析 ( Liquid Chromatography Mass Spectrometry , 略称 : LC / MS 分析 ) によって分析したので以下に示す。

50

## 【0351】

L C / M S 分析は、ウォーターズ社製 A c q u i t y U P L C およびウォーターズ社製 X e v o G 2 T o f M S を用いて行った。

## 【0352】

M S 分析では、エレクトロスプレーイオン化法 ( E l e c t r o S p r a y I o n i z a t i o n 、 略称 : E S I ) によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は 3 . 0 k V 、サンプルコーン電圧は 3 0 V とし、検出はポジティブモードで行った。

## 【0353】

さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室 ( コリジョンセル ) 内でアルゴンガスと衝突させて複数のプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー ( コリジョンエネルギー ) は 5 0 e V とした。なお、測定する質量範囲は  $m / z = 1 0 0 \sim 1 2 0 0$  とした。

10

## 【0354】

測定結果を図 2 1 に示す。図 2 1 の結果から、構造式 ( 1 0 3 ) で表される本発明の一態様である複素環化合物、 2 m D B T B P D B q - I I ( 略称 ) は、主として  $m / z = 3 4 7$  付近、  $m / z = 2 2 9$  付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。

## 【0355】

なお、図 2 1 に示す結果は、 2 m D B T B P D B q - I I ( 略称 ) に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる 2 m D B T B P D B q - I I ( 略称 ) を同定する上で重要なデータであるといえる。

20

## 【0356】

なお、  $m / z = 5 3 8$  付近のプロダクトイオンは、構造式 ( 1 0 3 ) の化合物におけるジベンゾ [ f , h ] キノキサリン環から C 原子と N 原子が一つずつ離脱した状態のカチオンと推定され、本発明の一態様である複素環化合物の特徴の一つである。また、  $m / z = 2 2 9$  付近のプロダクトイオンはジベンゾ [ f , h ] キノキサリンのようなジアザトリフェニレニル基のカチオンと推定されるが、他の  $m / z = 2 0 2$  付近、  $m / z = 1 7 7$  付近、  $m / z = 1 6 5$  付近のプロダクトイオンも同時に検出されており、本発明の一態様である複素環化合物 2 m D B T B P D B q - I I ( 略称 ) が、ジベンゾ [ f , h ] キノキサリン環を含んでいることを示唆するものである。

## 【0357】

30

また、本発明の一態様である 2 m D B T B P D B q - I I ( 略称 ) を飛行時間二次イオン質量分析計 ( Time - o f - f l i g h t s e c o n d a r y i o n m a s s s p e c t r o m e t e r : T O F - S I M S ) にて測定した正イオンの場合の定性スペクトルについて、図 3 2 に示す。

## 【0358】

装置は、 T O F S I M S 5 ( I O N T O F 社製 ) 、一次イオン源は  $B i _ 3 ^ { + + }$  を用いた。なお、一次イオンは、パルス幅 7 ~ 1 2 n m のパルス状に照射し、その照射量は  $8 . 2 \times 1 0 ^ { 1 0 } i o n s / c m ^ { 2 }$  以上  $6 . 7 \times 1 0 ^ { 1 1 } i o n s / c m ^ { 2 }$  以下 ( $1 \times 1 0 ^ { 1 2 } i o n s / c m ^ { 2 }$  以下) 、加速電圧は 2 5 k e V 、電流値は 0 . 2 p A とした。試料は 2 m D B T B P D B q - I I ( 略称 ) の粉末を用いて測定した。

40

## 【0359】

図 3 2 の T O F - S I M S 分析 ( 正イオン ) の結果から、構造式 ( 1 0 3 ) で表される本発明の一態様である複素環化合物、 2 m D B T B P D B q - I I ( 略称 ) ( $m / z = 5 6 4 . 1 7$  ) は、主として  $m / z = 5 6 5$  付近、  $m / z = 2 0 1$  付近、  $m / z = 1 7 6$  付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、ここでいう付近とは、水素イオンや同位体の存在の有無により変化するプロダクトイオンの数値の差を許容範囲とすることを意味するものとする。また、図 3 2 に示す結果は、図 2 1 で示した M S 分析 ( 正イオン ) により得られる 2 m D B T B P D B q - I I ( 略称 ) のプロダクトイオンと類似するプロダクトイオンが得られることから、 T O F - S I M S による測定結果も同様に混合物中に含まれる 2 m D B T B P D B q - I I ( 略称 ) を同定する上で重要なデータであ

50

るといえる。

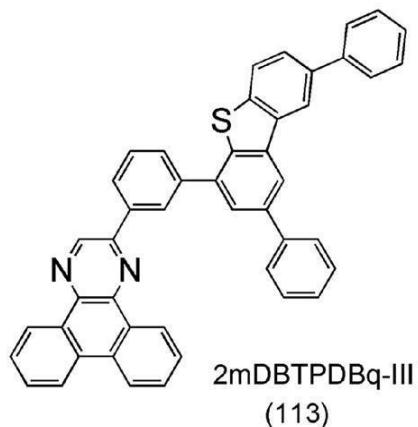
【0360】

(参考合成例2)

上記実施例4で用いた下記構造式(113)に示される2-[3-(2,8-ジフェニル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)の合成方法の一例について説明する。

【0361】

【化56】



10

20

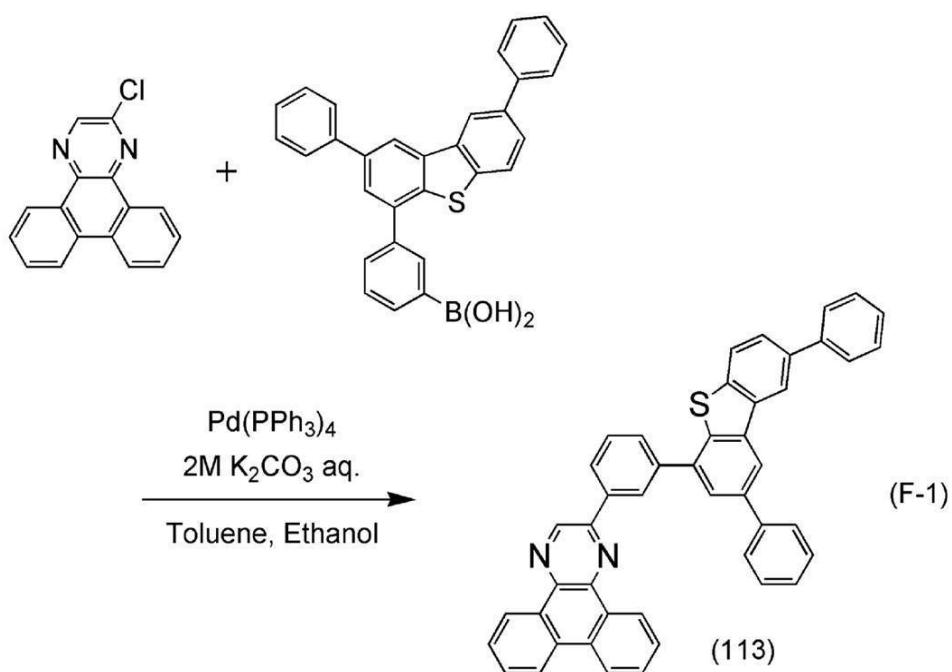
【0362】

2mDBTPDBq-III(略称)の合成

2mDBTPDBq-III(略称)の合成スキームを(F-1)に示す。

【0363】

【化57】



30

40

【0364】

100mL三口フラスコに2-クロロジベンゾ[f,h]キノキサリン0.40g(1.5mmol)、3-(2,8-ジフェニルジベンゾチオフェン-4-イル)フェニルボロン酸0.68g(1.5mmol)、トルエン15mL、エタノール2.0mL、2Mの炭酸カリウム水溶液1.5mLを加えた。この混合物を、減圧下で攪拌することで脱気

50

し、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)51mg(43μmol)を加えた。この混合物を窒素気流下、80で4時間攪拌した。所定時間経過後、得られた混合物に水を加え、トルエンで水層から有機物を抽出した。得られた抽出溶液と有機層とを合わせ、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然濾過し、濾液を濃縮して固体を得た。得られた固体をトルエンに溶解し、該トルエン溶液をアルミナ、フロリジール(和光純薬工業株式会社、カタログ番号:540-00135)、セライト(和光純薬工業株式会社、カタログ番号:531-16855)を通して吸引濾過し、得られた濾液を濃縮して固体を得た。得られた固体をトルエンで洗浄し、さらにこの固体にメタノールを加えて、該メタノール懸濁液に超音波を照射して、吸引濾過により固体を回収したところ、目的物の白色粉末を収量0.60g、収率61%で得た。 10

#### 【0365】

得られた白色粉末0.59gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力2.7Pa、アルゴン流量5mL/minの条件で、白色粉末を330で加熱して行った。昇華精製後目的物の白色粉末を0.54g、収率90%で得た。

#### 【0366】

核磁気共鳴法(NMR)によって、この化合物が目的物である2mDBTPDBq-II(略称)であることを確認した。

#### 【0367】

得られた物質の<sup>1</sup>H NMRデータを以下に示す。

<sup>1</sup>H NMR(CDC1<sub>3</sub>, 300MHz): δ = 7.37 - 7.55(m, 6H), 7.73 - 7.84(m, 10H), 7.90 - 7.98(m, 3H), 8.44 - 8.48(m, 3H), 8.65(dd, J = 7.8Hz, 1.5Hz, 2H), 8.84 - 8.85(m, 1H), 9.27(dd, J = 7.2Hz, 2.7Hz, 1H), 9.46(dd, J = 7.8Hz, 2.1Hz, 1H), 9.51(s, 1H)。

#### 【0368】

なお、上述した参考合成例2で得られた2mDBTPDBq-II(略称)を液体クロマトグラフ質量分析(Liquid Chromatography Mass Spectrometry, 略称: LC/MS分析)によって分析したので以下に示す。

#### 【0369】

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

#### 【0370】

MS分析では、エレクトロスプレーイオン化法(Electrospray Ionization, 略称: ESI)によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は3.0kV、サンプルコーン電圧は30Vとし、検出はポジティブモードで行った。

#### 【0371】

さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室(コリジョンセル)内でアルゴンガスと衝突させて複数のプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー(コリジョンエネルギー)は50eVと70eVの両方とした。なお、測定する質量範囲はm/z = 100 ~ 1200とした。 40

#### 【0372】

測定結果を図22(A)(B)に示す。なお、図22(A)には、50eVの場合を示し、図22(B)には、70eVの場合を示した。図22(B)の結果から、構造式(113)で表される本発明の一態様である複素環化合物、2mDBTPDBq-II(略称)は、主としてm/z = 229付近、m/z = 202付近、m/z = 177付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。

#### 【0373】

なお、図22(B)に示す結果は、2mDBTPDBq-II(略称)に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる2mDBTPDBq-II

10

20

30

40

50

(略称)を同定する上で重要なデータであるといえる。

【0374】

また、図22(A)に見られる $m/z = 614$ 付近のプロダクトイオンは、構造式(113)の化合物におけるジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環からC原子とN原子が一つずつ離脱した状態のカチオンと推定され、本発明の一態様である複素環化合物の特徴の一つである。また、 $m/z = 229$ 付近のプロダクトイオンはジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリンのようなジアザトリフェニレニル基のカチオンと推定されるが、他の $m/z = 202$ 付近、 $m/z = 177$ 付近、 $m/z = 165$ 付近のプロダクトイオンも同時に検出されており、本発明の一態様である複素環化合物2mDBTPDBq-IIが、ジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環を含んでいることを示唆するものである。

10

【0375】

また、本発明の一態様である2mDBTPDBq-II(略称)を飛行時間二次イオン質量分析計(Time-of-flight secondary ion mass spectrometer: TOF-SIMS)にて測定した正イオンの場合の定性スペクトルについて、図33に示す。

【0376】

装置は、TOF-SIMS5(ION TOF社製)、一次イオン源は $\text{Bi}_3^{++}$ を用いた。なお、一次イオンは、パルス幅7~12nmのパルス状に照射し、その照射量は $8.2 \times 10^{10}$  ions/cm<sup>2</sup>以上 $6.7 \times 10^{11}$  ions/cm<sup>2</sup>以下( $1 \times 10^{12}$  ions/cm<sup>2</sup>以下)、加速電圧は25keV、電流値は0.2pAとした。試料は2mDBTPDBq-II(略称)の粉末を用いて測定した。

20

【0377】

図33のTOF-SIMS分析(正イオン)の結果から、構造式(113)で表される本発明の一態様である複素環化合物、2mDBTPDBq-II(略称)( $m/z = 640.2$ )は、主として $m/z = 176$ 付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、ここでいう付近とは、水素イオンや同位体の存在の有無により変化するプロダクトイオンの数値の差を許容範囲とすることを意味するものとする。また、図33に示す結果は、図22で示したMS分析(正イオン)により得られる2mDBTPDBq-II(略称)のプロダクトイオンと類似するプロダクトイオンが得られることから、TOF-SIMSによる測定結果も同様に混合物中に含まれる2mDBTPDBq-II(略称)を同定する上で重要なデータであるといえる。

30

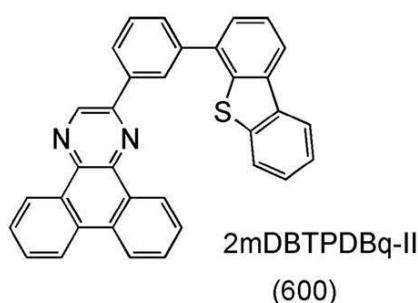
【0378】

(参考合成例3)

上記実施例4で用いた下記構造式(600)に示される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-II)の合成方法の一例について説明する。

【0379】

【化58】



40

【0380】

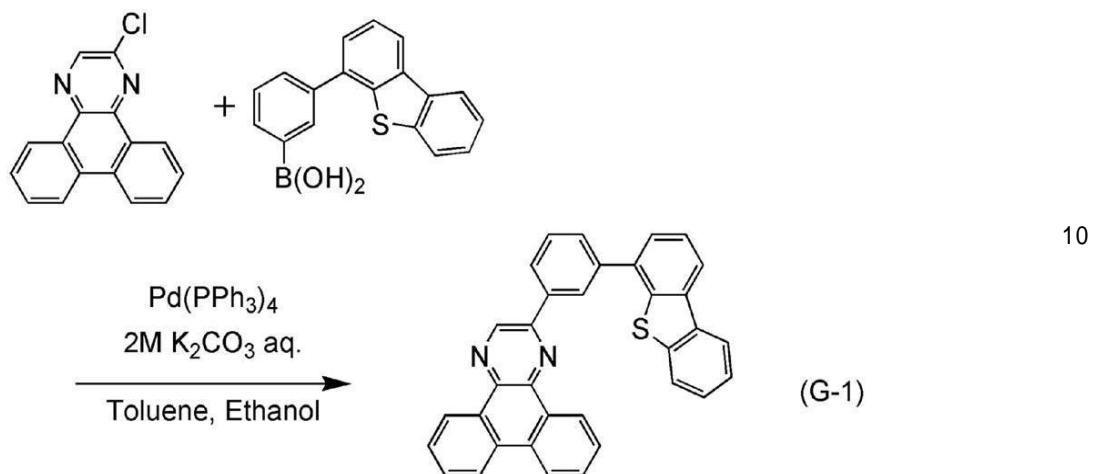
2mDBTPDBq-II(略称)の合成

50

2mDBTPDBq-I (略称) の合成スキームを (G-1) に示す。

【0381】

【化59】



【0382】

2 L 三口フラスコに 2 - クロロジベンゾ [ f , h ] キノキサリン 5 . 3 g ( 2 0 m m o 1 ) 、 3 - ( ジベンゾチオフェン - 4 - イル ) フェニルボロン酸 6 . 1 g ( 2 0 m m o 1 ) 、 テトラキス ( トリフェニルホスフィン ) パラジウム ( 0 ) 4 6 0 m g ( 0 . 4 m m o 1 ) 、 トルエン 3 0 0 m L 、 エタノール 2 0 m L 、 2 M の炭酸カリウム水溶液 2 0 m L を加えた。この混合物を、減圧下で攪拌することで脱気し、フラスコ内を窒素置換した。この混合物を窒素気流下、1 0 0 で 7 . 5 時間攪拌した。室温まで冷ました後、得られた混合物を濾過して白色の濾物を得た。得られた濾物を水、エタノールの順で洗浄した後、乾燥させた。得られた固体を約 6 0 0 m L の熱トルエンに溶かし、セライト ( 和光純薬工業株式会社、カタログ番号 : 5 3 1 - 1 6 8 5 5 ) 、 フロリジール ( 和光純薬工業株式会社、カタログ番号 : 5 4 0 - 0 0 1 3 5 ) を通して吸引濾過し、無色透明の濾液を得た。得られた濾液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。クロマトグラフィーは、熱トルエンを展開溶媒に用いて行った。ここで得られた固体にアセトンとエタノールを加えて超音波を照射した後、生じた懸濁物を濾取して乾燥させたところ、目的物の白色粉末を収量 7 . 8 5 g 、 収率 8 0 % で得た。

20

30

【0383】

上記目的物は、熱トルエンには比較的可溶であったが、冷めると析出しやすい材料であった。また、アセトン、エタノールなど他の有機溶剤には難溶であった。そのため、この溶解性の差を利用して、上記の様に、簡便な方法で収率よく合成することができた。具体的には、反応終了後、室温に戻して析出させた固体を濾取することで、大部分の不純物を簡便に除くことができた。また、熱トルエンを展開溶媒とした、カラムクロマトグラフィーにより、析出しやすい目的物も簡便に精製することができた。

【0384】

得られた白色粉末 4 . 0 g をトラ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 5 . 0 P a 、アルゴン流量 5 m L / m i n の条件で、白色粉末を 3 0 0 で加熱して行った。昇華精製後、目的物の白色粉末を 3 . 5 g 、 収率 8 8 % で得た。

【0385】

核磁気共鳴法 ( N M R ) によって、この化合物が目的物である 2mDBTPDBq-I ( 略称 ) であることを確認した。

【0386】

得られた物質の <sup>1</sup> H N M R データを以下に示す。

<sup>1</sup> H N M R ( C D C l <sub>3</sub> , 3 0 0 M H z ) : ( p p m ) = 7 . 4 5 - 7 . 5 2 ( m , 2 H ) , 7 . 5 9 - 7 . 6 5 ( m , 2 H ) , 7 . 7 1 - 7 . 9 1 ( m , 7 H ) , 8 . 2

40

50

0 - 8 . 2 5 ( m , 2 H ) , 8 . 4 1 ( d , J = 7 . 8 H z , 1 H ) , 8 . 6 5 ( d , J = 7 . 5 H z , 2 H ) , 8 . 7 7 - 8 . 7 8 ( m , 1 H ) , 9 . 2 3 ( d d , J = 7 . 2 H z , 1 . 5 H z , 1 H ) , 9 . 4 2 ( d d , J = 7 . 8 H z , 1 . 5 H z , 1 H ) , 9 . 4 8 ( s , 1 H ) .

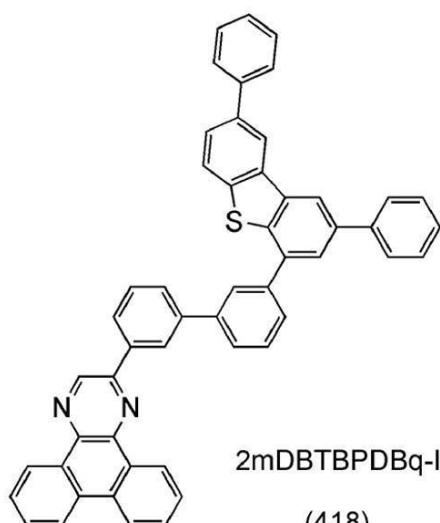
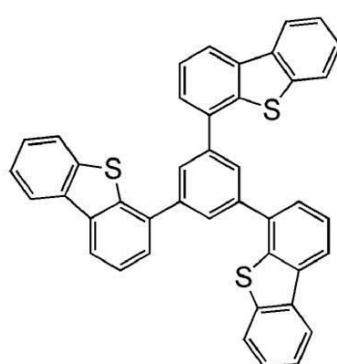
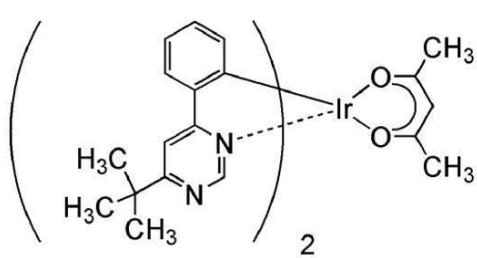
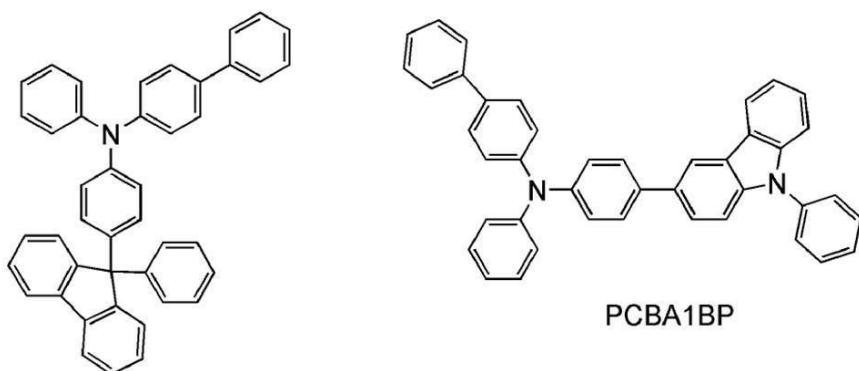
### 【実施例 5】

〔 0 3 8 7 〕

本実施例では、本発明の複素環化合物である 2 - { 3 - [ 3 - ( 2 , 8 - ジフェニルジベンゾチオフェン - 4 - イル ) フェニル ] フェニル } デベンゾ [ f , h ] キノキサリン ( 略称 : 2 m D B T B P D B q - I I I ) ( 構造式 ( 418 ) ) を発光層の一部に用いた発光素子 4 について説明する。なお、本実施例における発光素子 4 の説明には、実施例 3 で発光素子 1 の説明に用いた図 11 を用いることとする。また、本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。

〔 0 3 8 8 〕

【化 6 0 】



DBT3P-II

## 【0389】

## 発光素子4の作製

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

## 【0390】

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

## 【0391】

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

## 【0392】

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

## 【0393】

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

## 【0394】

次に、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン(略称:BPAFLP)を20nm蒸着することにより、正孔輸送層1112を形成した。

## 【0395】

次に、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。まず、2-[3-[3-(2,8-ジフェニルジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]フェニル]ジベンゾ[*f*,*h*]キノキサリン(略称:2mDBTBPDBq-II)、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)、(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(tBu<sub>4</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)])を、2mDBTBPDBq-II(略称):PCBA1BP(略称):[Ir(tBu<sub>4</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)](略称)=0.8:0.2:0.05(質量比)となるように共蒸着した。なお、膜厚は、40nmとした。以上により、発光層1113を形成した。

## 【0396】

次に、発光層1113上に2mDBTBPDBq-II(略称)を蒸着し、膜厚を10nmとした後、バソフェナントロリン(略称:Bphen)を20nm蒸着することにより、積層構造を有する電子輸送層1114を形成した。さらに電子輸送層1114上にフッ化リチウムを1nm蒸着することにより、電子注入層1115を形成した。

## 【0397】

最後に、電子注入層1115上にアルミニウムを200nmの膜厚となるように蒸着し、陰極となる第2の電極1103形成し、発光素子4を得た。なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

## 【0398】

以上により得られた発光素子4の素子構造を表4に示す。

## 【0399】

10

20

30

40

50

## 【表4】

	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4	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoO <sub>x</sub> (4:2 40nm)	BPAFLP (20nm)	*4	**4	Bphen (20nm)	LiF(1nm) Al (200nm)

\*4 2mDBTBPDBq-III :PCBA1BP :[Ir(tBu<sub>2</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)] (0.8:0.2:0.05 40nm)

\*\*4 2mDBTBPDBq-III(10nm)

## 【0400】

10

また、作製した発光素子4は、大気に曝されないように窒素雰囲気のグローブボックス内において封止した（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に80にて1時間熱処理）。

## 【0401】

## 発光素子4の動作特性

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

## 【0402】

まず、発光素子4の電流密度-輝度特性を図23、電圧-輝度特性を図24、輝度-電流効率特性を図25にそれぞれ示す。

20

## 【0403】

図25より、本発明の一態様の複素環化合物を発光層の一部にホスト材料として用いた発光素子4は、低消費電力で高効率な素子であることがわかった。

## 【0404】

また、1000cd/m<sup>2</sup>付近における発光素子4の主な初期特性値を以下の表5に示す。

## 【0405】

## 【表5】

	電圧(V)	電流(mA)	電流密度(mA/cm <sup>2</sup> )	色度(x,y)	輝度(cd/m <sup>2</sup> )	電流効率(cd/A)	パワー効率(lm/W)	外部量子効率(%)
発光素子4	3.0	0.043	1.1	(0.43, 0.56)	930	87	92	24

## 【0406】

30

上記、表5の結果からも本実施例で作製した発光素子4は、高輝度であり、高い電流効率を示していることが分かる。

## 【0407】

また、発光素子4に0.1mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で電流を流した際の発光スペクトルを、図26に示す。図26に示す通り、発光素子4の発光スペクトルは544nm付近にピークを有しており、発光層1113に含まれる[Ir(tBu<sub>2</sub>ppm)<sub>2</sub>(acac)]（略称）の発光に由来していることがわかった。

40

## 【0408】

従って、2mDBTBPDBq-I III（略称）は、高いT1準位を有し、可視域（青色から長波長）の発光を呈する素子のホスト材料やキャリア輸送材料に用いることができる事がわかった。

## 【0409】

## 発光素子4の耐熱特性

作製した発光素子4の耐熱性試験を行った。評価は、100に保たれた恒温槽で発光

50

素子 4 を保存し、所定の時間経過した後、電流効率を測定することにより行った。なお、電流効率の測定は、恒温槽から取り出した後、室温（25℃に保たれた雰囲気）で行った。

【0410】

まず、100℃で1130時間保存した後の発光素子4の電流効率の測定結果を、図27に示す。

【0411】

この測定結果から発光素子4は、100℃で1000時間以上保存したにも関わらず、電流効率の劣化は非常に小さいことがわかる。

【0412】

また、本実施例の保存試験結果として、100℃での保存時間に対する規格化電流効率を図28に示す。なお、図28における横軸は、100℃での保存時間であり、縦軸は、1,000 [cd/m<sup>2</sup>] の輝度における発光素子4の電流効率を、保存試験前を100（%）として規格化した数値である。この結果から、ベンゼン環が4個存在する2mDBTBPDBq-III（略称）を用いた発光素子4ではほとんど特性が劣化しないことがわかる。

【0413】

本発明の一態様である複素環化合物のような1つのジベンゾ[*f*,*h*]キノキサリン環、1つの正孔輸送性骨格を有する環、およびベンゼン環を含む化合物は、真空蒸着で均質な膜が形成できるため、真空蒸着による成膜に適している。しかしながら、ガラス転移温度（T<sub>g</sub>）が観測されないため、これまで、化合物中のどの部分の骨格が耐熱性に効果をもたらしているのか不明であった。すなわち、ベンゼン環の数の違いによって、T<sub>g</sub>がどの程度異なるのかを判断することが困難であった。しかしながら、本発明で開示するように本発明の一態様である複素環化合物の構造の場合においては、ベンゼン環の数が1個の場合と2個以上の場合で、形成した膜の耐熱性にしきい値的な差が生じることを見出したため、本発明の一態様である複素環化合物は、ベンゼン環の数に特徴を有する構造とすることで、従来よりも耐熱性に優れた新規の複素環化合物を得ることができた。

【実施例6】

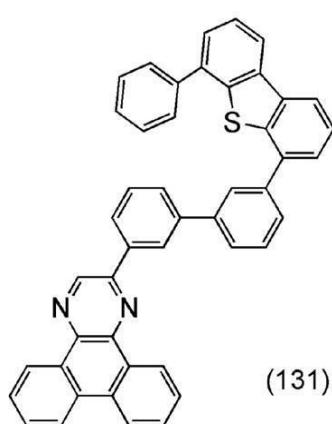
【0414】

合成例3

本実施例では、実施の形態1の構造式（131）で表される本発明の一態様である複素環化合物、2-[3-[3-(6-フェニルジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]フェニル]ジベンゾ[*f*,*h*]キノキサリン（略称：2mDBTBPDBq-IV）の合成方法について説明する。なお、2mDBTBPDBq-IV（略称）の構造を以下に示す。

【0415】

【化61】



10

20

30

40

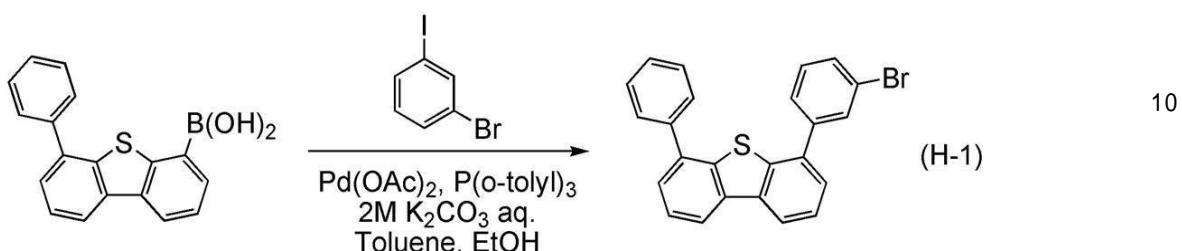
50

## 【0416】

ステップ1：4-(3-プロモフェニル)-6-フェニルジベンゾチオフェンの合成  
4-(3-プロモフェニル)-6-フェニルジベンゾチオフェンの合成スキームを(H-1)に示す。

## 【0417】

## 【化62】



## 【0418】

300 mL 三口フラスコに 6-フェニルジベンゾチオフェン-4-イルボロン酸 7.0 g (23.0 mmol)、1-プロモ-3-ヨードベンゼン 8.46 g (29.9 mmol)、トリス(2-メチルフェニル)ホスフィン 840 mg (2.8 mmol)、トルエン 115 mL、エタノール 23 mL、2 M 炭酸カリウム水溶液 35 mL を加え、攪拌しながら脱気した後、酢酸パラジウム 155 mg (0.69 mmol)を入れ、窒素気流下 80 °C で 4 時間加熱攪拌し反応させた。反応後この混合物の水層をトルエンで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥後この混合物を自然ろ過した。得られたろ液を適量まで濃縮し、セライト、アルミナに通してろ過し、ろ液を濃縮したところ、茶色油状物が得られた。この油状物にヘキサンとアセトニトリルを入れ分離し、ヘキサン層を濃縮したところ白色固体を 7.45 g、収率 78.0 % で得た。

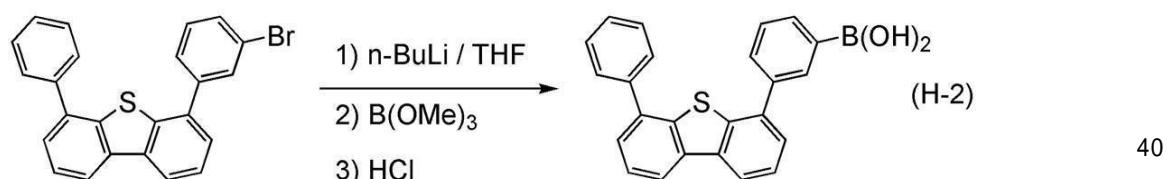
## 【0419】

ステップ2：3-(6-フェニルジベンゾチオフェン-4-イル)フェニルボロン酸の合成

3-(6-フェニルジベンゾチオフェン-4-イル)フェニルボロン酸の合成スキームを(H-2)に示す。

## 【0420】

## 【化63】



## 【0421】

300 mL フラスコに 4-(3-プロモフェニル)-6-フェニルジベンゾチオフェン 5.69 g (13.7 mmol)を入れ、フラスコ内を窒素置換した。これにテトラヒドロフラン(THF) 137 mL を加え、この溶液を窒素気流下で -78 °C に冷却した。冷却後、この溶液に n-ブチルリチウム (1.6 mol / L ヘキサン溶液) 9.4 mL (15.0 mmol) をシリンジにより滴下して加えた。滴下終了後、この溶液を同温度で 2 時間攪拌した。攪拌後、この溶液にホウ酸トリメチル 1.6 mL (16.4 mmol) を加え、室温に戻しながら 16 時間攪拌した。攪拌後、この溶液に 1 M の塩酸を約 40 mL

50

加え、2時間半攪拌した。攪拌後、この水層を酢酸エチルで抽出し、得られた抽出溶液と有機層を合わせ、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液と飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥後この混合物を自然ろ過し、ろ液を濃縮して茶色油状物を得た。この油状物をトルエン/ヘキサンで再結晶したところ、目的物の淡褐色固体を収量1.2g、収率23%で得た。

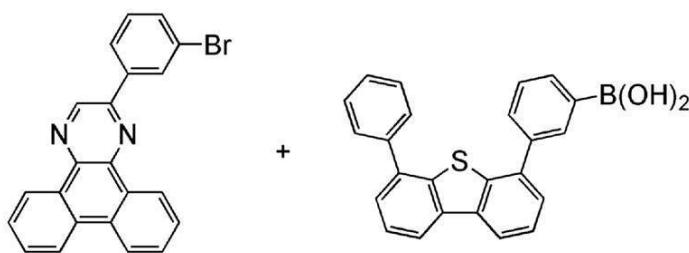
## 【0422】

ステップ3: 2-[3-[3-(6-フェニルジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]フェニル]ジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン(略称: 2mDBTBPDBq-IV)の合成

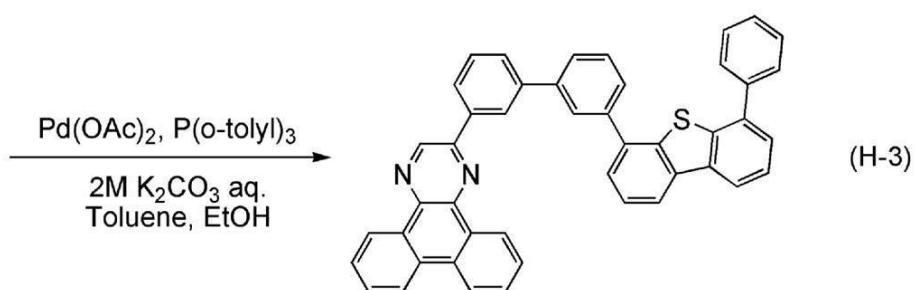
2mDBTBPDBq-IV(略称)の合成スキームを(H-3)に示す。

## 【0423】

## 【化64】



10



20

## 【0424】

30

300mL三口フラスコに3-(6-フェニルジベンゾチオフェン-4-イル)フェニルボロン酸1.04g(2.7mmol)、2-(3-ブロモフェニル)ジベンゾキノキサリン910mg(2.6mmol)、トリス(2-メチルフェニル)ホスフィン100mg(0.33mmol)にトルエン13mL、エタノール3mL、2M炭酸カリウム水溶液4mLを加え、攪拌しながら脱気した後、酢酸パラジウム18mg(0.08mmol)を入れ、窒素気流下80℃で6時間加熱攪拌し反応させた。反応後この混合物をろ過した。ろ物にトルエンを加え加熱ろ過し、ろ液を濃縮したところ白色固体を0.6g、収率37.5%で得た。

## 【0425】

40

得られた白色固体0.60gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製条件は、圧力2.8Pa、アルゴンガスを流量5.0mL/minで流しながら、280℃で2mDBTBPDBq-IV(略称)を加熱した。昇華精製後、2mDBTBPDBq-IV(略称)の白色固体を0.46g、回収率77%で得た。

## 【0426】

上記合成法で得られた化合物の核磁気共鳴分光法(<sup>1</sup>H-NMR)による分析結果を下記に示す。また、<sup>1</sup>H-NMRチャートを図29(A)(B)に示す。なお、図29(B)は、7(ppm)から10(ppm)における図29(A)の拡大図である。この結果から、上述の構造式(131)で表される本発明の一態様の複素環化合物である2mDBTBPDBq-IV(略称)が得られたことがわかった。

## 【0427】

50

<sup>1</sup> H NMR ( CDCl<sub>3</sub>, 500 MHz) : δ = 7.34 - 7.37 (m, 1H)、7.44 - 7.47 (t, J = 7.7 Hz, 2H)、7.49 - 7.50 (dd, J = 7.5 Hz, 1.1 Hz, 1H)、7.58 - 7.73 (m, 8H)、7.75 - 7.83 (m, 6H)、8.06 (t, J = 1.7 Hz, 1H)、8.21 - 8.25 (t, J = 9.1 Hz, 2H)、8.33 - 8.35 (d, J = 8.0 Hz, 1H)、8.62 (t, J = 1.7 Hz, 1H)、8.65 - 8.67 (d, J = 8.0 Hz, 2H)、9.25 - 9.27 (dd, J = 8.0, 1.7 Hz, 1H)、9.40 - 9.42 (dd, J = 8.0, 1.1 Hz, 1H)、9.45 (s, 1H)。

## 【0428】

次に、本実施例で得られた 2mDBTBPDBq - IV (略称) を液体クロマトグラフ 10 質量分析 (Liquid Chromatography Mass Spectrometry, 略称: LC/MS 分析) によって分析した。

## 【0429】

LC/MS 分析は、ウォーターズ社製 Acuity UPLC およびウォーターズ社 20 製 Xevo G2 Tof MS を用いて行った。

## 【0430】

MS 分析では、エレクトロスプレーイオン化法 (Electrospray Ionization, 略称: ESI) によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は 3.0 kV、サンプルコーン電圧は 30 V とし、検出はポジティブモードで行った。

## 【0431】

さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室 (コリジョンセル) 内でアルゴンガスと衝突させて複数のプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー (コリジョンエネルギー) は 50 eV と 70 eV の両方とした。なお、測定する質量範囲は m/z = 100 ~ 1200 とした。

## 【0432】

測定結果を図 30 (A) (B) に示す。なお、図 30 (A) には、50 eV の場合を示し、図 30 (B) には、70 eV の場合を示した。図 30 (B) の結果から、構造式 (131) で表される本発明の一態様である複素環化合物、2mDBTBPDBq - IV (略称) は、主として m/z = 229 付近、m/z = 202 付近、m/z = 177 付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。

## 【0433】

なお、図 30 (B) に示す結果は、2mDBTBPDBq - IV (略称) に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる 2mDBTBPDBq - IV (略称) を同定する上で重要なデータであるといえる。

## 【0434】

また、図 30 (A) に見られる m/z = 614 付近のプロダクトイオンは、構造式 (131) の化合物におけるジベンゾ [f, h] キノキサリン環から C 原子と N 原子が一つずつ離脱した状態のカチオンと推定され、本発明の一態様である複素環化合物の特徴の一つである。また、m/z = 229 付近のプロダクトイオンはジベンゾ [f, h] キノキサリンのようなジアザトリフェニレン基のカチオンと推定されるが、他の m/z = 202 付近、m/z = 177 付近、m/z = 165 付近のプロダクトイオンも同時に検出されており、本発明の一態様である複素環化合物 2mDBTBPDBq - IV が、ジベンゾ [f, h] キノキサリン環を含んでいることを示唆するものである。

## 【実施例 7】

## 【0435】

## 合成例 4

本実施例では、実施の形態 1 の構造式 (203) で表される本発明の一態様である複素環化合物、2 - {3 - [3 - (ジベンゾフラン - 4 - イル) フェニル] フェニル} ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 2mDBFBPDBq - II) の合成方法について説明する。なお、2mDBFBPDBq - II (略称) の構造を以下に示す。

10

20

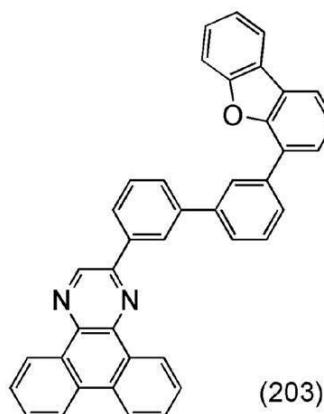
30

40

50

【0436】

【化65】



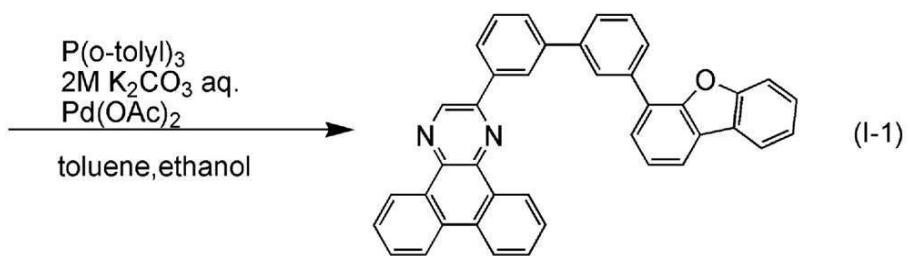
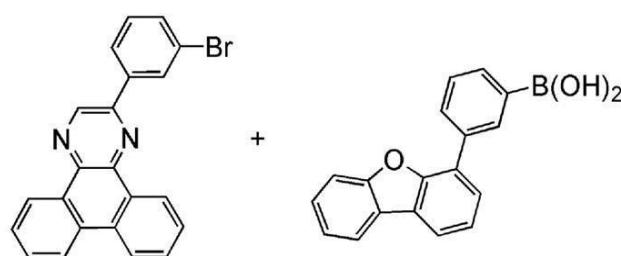
【0437】

2mDBFBPPDBq-II (略称) の合成

2mDBFBPPDBq-II (略称) の合成スキームを (I-1) に示す。

【0438】

【化66】



【0439】

300 mL 三口フラスコに 4.0 g (10 mmol) の 2-(3-ブロモフェニル)ジベンゾ [f, h] キノキサリンと、3.3 g (11 mmol) の 3-(ベンゾフラン-4-イル)フェニルボロン酸と、0.28 g (1.0 mmol) の トリ(オルト-トリル)ホスフィンを入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物に、100 mL のトルエンと、10 mL のエタノールと、16 mL の炭酸カリウム水溶液 (2.0 mol/L) を加えた。この混合物を減圧しながら攪拌することで脱気した。この混合物に 67.1 mg (0.3 mmol) の 酢酸パラジウム (II) を加え、窒素気流下、80 °C で 1.5 時間攪拌した。攪拌後、47.3 mg (0.2 mmol) の 酢酸パラジウム (II) を加え、2.8 時間攪拌した後、0.23 g (0.8 mmol) の トリ(オルト-トリル)ホスフィンと、91.2 mg (0.4 mmol) の 酢酸パラジウム (II) を加え 2.2 時間攪拌した。攪拌後、90 °C にして、0.23 g (0.8 mmol) の トリ(オルト-トリル)ホスフィンと、0.12 g (0.5 mmol) の 酢酸パラジウム (II) を加え攪拌 1.0 時間した。この混合物に水とトルエンを加えて加熱した後、セライトを通して吸引ろ過を

40

50

した。得られたろ液の水層をトルエンで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて、硫酸マグネシウムにより乾燥し、乾燥後この混合物を自然ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た固体をトルエンとエタノールの混合溶媒で再結晶を行い、目的の固体を 5.3 g、収率 91 % で得た。

【0440】

上記合成法で得られた化合物の核磁気共鳴分光法 ( <sup>1</sup> H - NMR ) による分析結果を下記に示す。また、 <sup>1</sup> H - NMR チャートを図 34 ( A ) ( B ) に示す。なお、図 34 ( B ) は、 7 ( ppm ) から 8.5 ( ppm ) における図 34 ( A ) の拡大図である。この結果から、上述の構造式 ( 203 ) で表される本発明の一態様の複素環化合物である 2mDBFBPDBq-II ( 略称 ) が得られたことがわかった。

10

【0441】

<sup>1</sup> H NMR ( CDCl<sub>3</sub>, 500 MHz ) : δ = 7.37 ( ddd, J = 7.5, 1.5 Hz, 1H )、7.43 - 7.50 ( m, 2H )、7.62 ( d, J = 8.0 Hz, 1H )、7.70 - 7.83 ( m, 8H )、7.87 ( dd, J = 6.0, 2.0 Hz, 1H )、7.97 - 8.02 ( m, 3H )、8.27 ( t, J = 1.5 Hz, 1H )、8.34 ( d, J = 7.5 Hz, 1H )、8.64 - 8.67 ( m, 3H ) 9.24 ( dd, J = 7.5, 1.5 Hz, 1H )、9.43 ( d, J = 8.0 Hz, 1H )、9.46 ( s, 1H )。

【0442】

次に、本実施例で得られた 2mDBFBPDBq-II ( 略称 ) を液体クロマトグラフ質量分析 ( Liquid Chromatography Mass Spectrometry, 略称 : LC/MS 分析 ) によって分析した。

20

【0443】

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

【0444】

MS 分析では、エレクトロスプレーイオン化法 ( Electrospray Ionization, 略称 : ESI ) によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は 3.0 kV、サンプルコーン電圧は 30 V とし、検出はポジティブモードで行った。

【0445】

さらに、以上の条件でイオン化された成分を衝突室 ( コリジョンセル ) 内でアルゴンガスと衝突させて複数のプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー ( コリジョンエネルギー ) は 50 eV とした。なお、測定する質量範囲は m/z = 100 ~ 1200 とした。

30

【0446】

測定結果を図 35 に示す。図 35 の結果から、構造式 ( 203 ) で表される本発明の一態様である複素環化合物、 2mDBFBPDBq-II ( 略称 ) において、主として m/z = 229 付近、 m/z = 331 付近、 m/z = 522 付近にプロダクトイオンが検出されたことがわかった。

【0447】

なお、図 35 に示す結果は、 2mDBFBPDBq-II ( 略称 ) に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる 2mDBFBPDBq-II ( 略称 ) を同定する上で重要なデータであるといえる。

40

【0448】

なお、 m/z = 522 付近のプロダクトイオンは、構造式 ( 131 ) の化合物におけるジベンゾ [ f, h ] キノキサリン環から C 原子と N 原子が一つずつ離脱した状態のカチオンと推定され、本発明の一態様である複素環化合物の特徴の一つである。また、 m/z = 229 付近のプロダクトイオンはジベンゾ [ f, h ] キノキサリンのようなジアザトリフェニレニル基のカチオンと推定されるが、他の m/z = 331 付近のプロダクトイオンも同時に検出されており、本発明の一態様である複素環化合物 2mDBFBPDBq-II

50

(略称)が、ジベンゾ[*f*, *h*]キノキサリン環を含んでいることを示唆するものである。

## 【符号の説明】

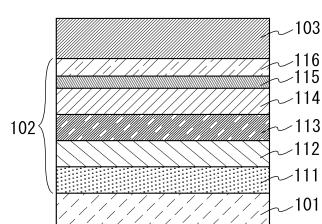
## 【0449】

101	第1の電極	
102	EL層	
103	第2の電極	
111	正孔注入層	
112	正孔輸送層	10
113	発光層	
114	電子輸送層	
115	電子注入層	
116	電荷発生層	
201	陽極	
202	陰極	
203	EL層	
204	発光層	
205	発光性化合物	
206	第1の有機化合物	
207	第2の有機化合物	20
301	第1の電極	
302(1)	第1のEL層	
302(2)	第2のEL層	
302(n-1)	第(n-1)のEL層	
302(n)	第(n)のEL層	
304	第2の電極	
305	電荷発生層(I)	
305(1)	第1の電荷発生層(I)	
305(2)	第2の電荷発生層(I)	
305(n-2)	第(n-2)の電荷発生層(I)	30
305(n-1)	第(n-1)の電荷発生層(I)	
401	反射電極	
402	半透過・半反射電極	
403a	第1の透明導電層	
403b	第2の透明導電層	
404B	第1の発光層(B)	
404G	第2の発光層(G)	
404R	第3の発光層(R)	
405	EL層	
410R	第1の発光素子(R)	40
410G	第2の発光素子(G)	
410B	第3の発光素子(B)	
501	素子基板	
502	画素部	
503	駆動回路部(ソース線駆動回路)	
504a, 504b	駆動回路部(ゲート線駆動回路)	
505	シール材	
506	封止基板	
507	配線	
508	FPC(フレキシブルプリントサーキット)	50

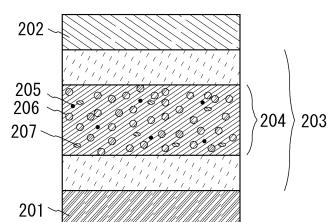
5 0 9	n チャネル型 T F T	
5 1 0	p チャネル型 T F T	
5 1 1	スイッチング用 T F T	
5 1 2	電流制御用 T F T	
5 1 3	第1の電極（陽極）	
5 1 4	絶縁物	
5 1 5	E L 層	
5 1 6	第2の電極（陰極）	
5 1 7	発光素子	
5 1 8	空間	10
7 1 0 0	テレビジョン装置	
7 1 0 1	筐体	
7 1 0 3	表示部	
7 1 0 5	スタンド	
7 1 0 7	表示部	
7 1 0 9	操作キー	
7 1 1 0	リモコン操作機	
7 2 0 1	本体	
7 2 0 2	筐体	
7 2 0 3	表示部	20
7 2 0 4	キー ボード	
7 2 0 5	外部接続ポート	
7 2 0 6	ポインティングデバイス	
7 3 0 1	筐体	
7 3 0 2	筐体	
7 3 0 3	連結部	
7 3 0 4	表示部	
7 3 0 5	表示部	
7 3 0 6	スピーカ部	
7 3 0 7	記録媒体挿入部	30
7 3 0 8	L E D ランプ	
7 3 0 9	操作キー	
7 3 1 0	接続端子	
7 3 1 1	センサ	
7 3 1 2	マイクロフォン	
7 4 0 0	携帯電話機	
7 4 0 1	筐体	
7 4 0 2	表示部	
7 4 0 3	操作ボタン	
7 4 0 4	外部接続ポート	40
7 4 0 5	スピーカ	
7 4 0 6	マイク	
8 0 0 1	照明装置	
8 0 0 2	照明装置	
8 0 0 3	照明装置	
8 0 0 4	照明装置	
9 0 3 3	留め具	
9 0 3 4	表示モード切り替えスイッチ	
9 0 3 5	電源スイッチ	
9 0 3 6	省電力モード切り替えスイッチ	50

9 0 3 8	操作スイッチ	
9 6 3 0	筐体	
9 6 3 1	表示部	
9 6 3 1 a	表示部	
9 6 3 1 b	表示部	
9 6 3 2 a	タッチパネルの領域	
9 6 3 2 b	タッチパネルの領域	
9 6 3 3	太陽電池	
9 6 3 4	充放電制御回路	
9 6 3 5	バッテリー	10
9 6 3 6	D C D C コンバータ	
9 6 3 7	操作キー	
9 6 3 8	コンバータ	
9 6 3 9	ボタン	

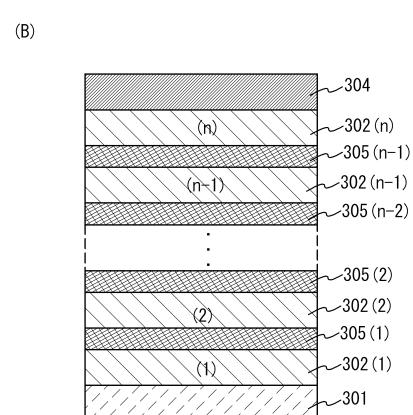
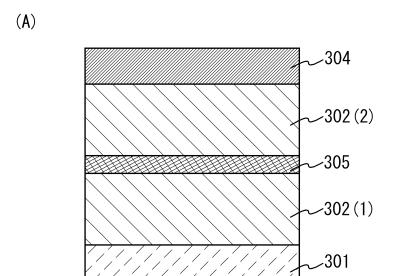
【図 1】



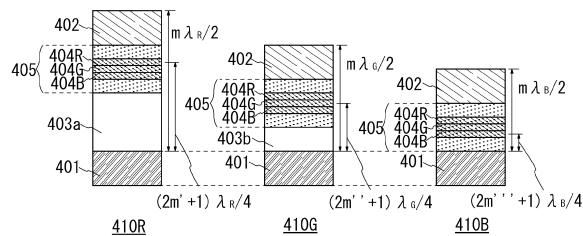
【図 2】



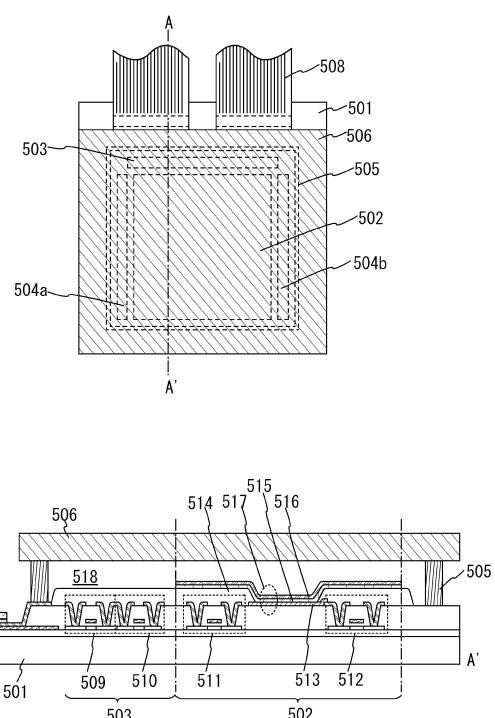
【図 3】



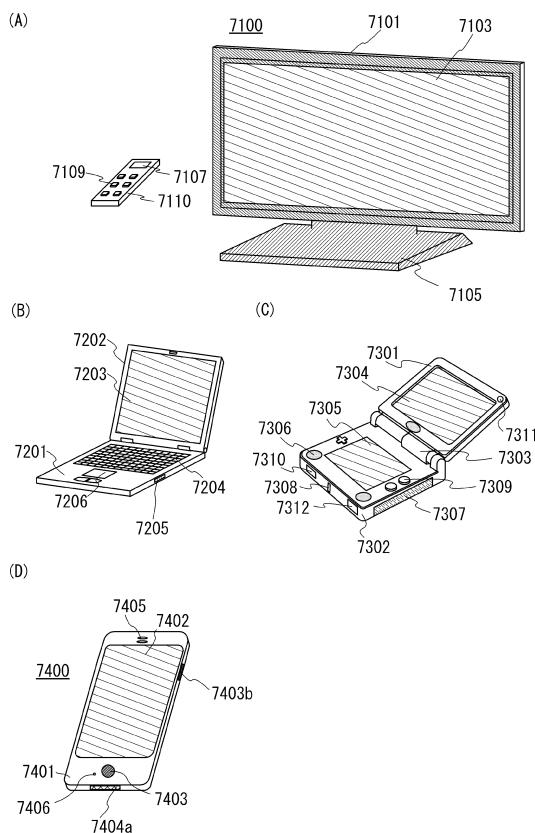
【図4】



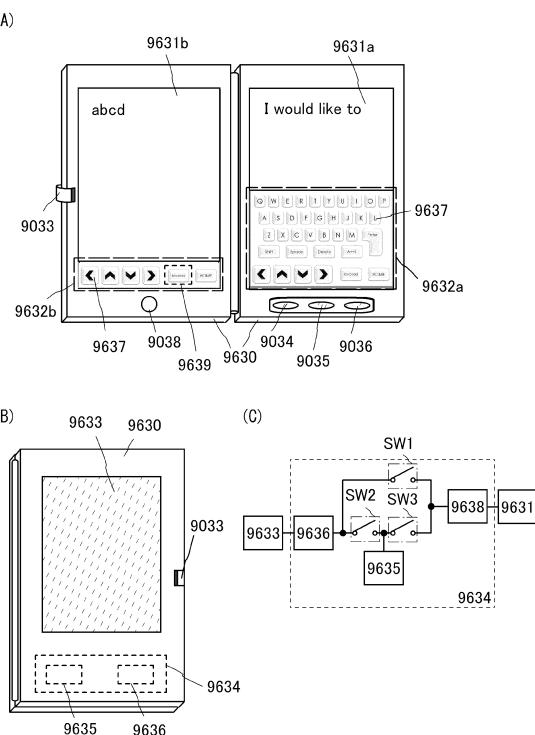
【図5】



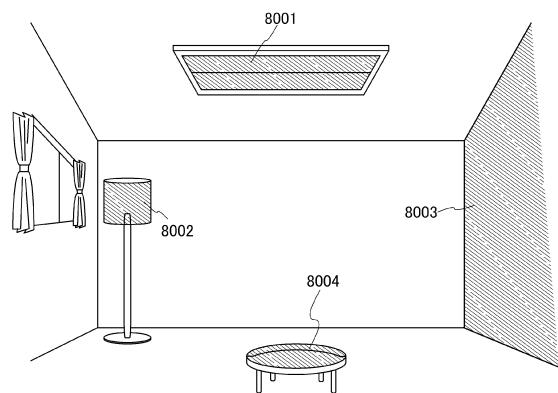
【図6】



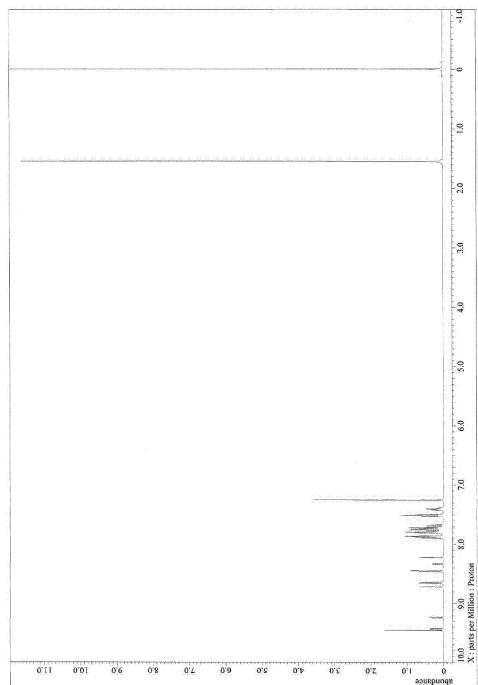
【図7】



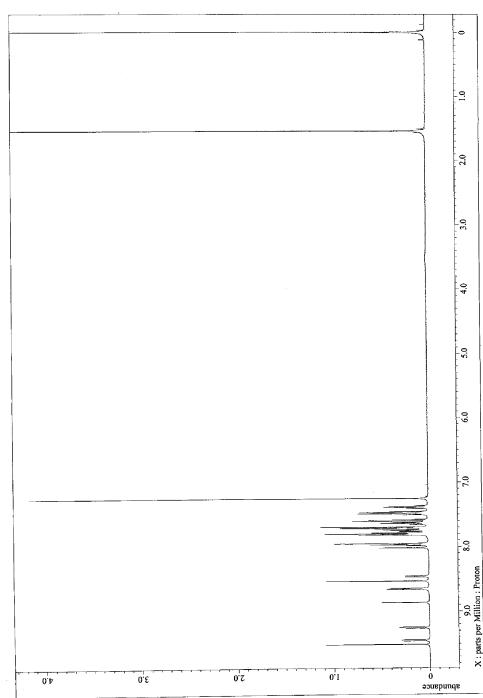
【図 8】



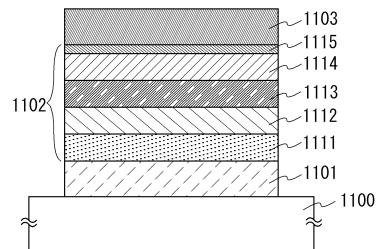
【図 9】



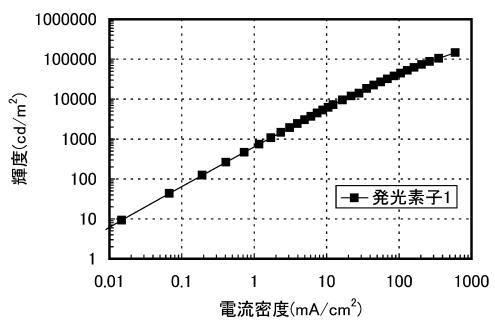
【図 10】



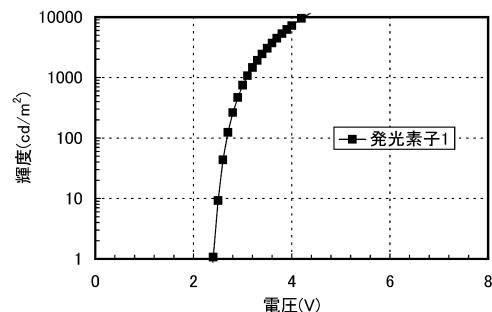
【図 11】



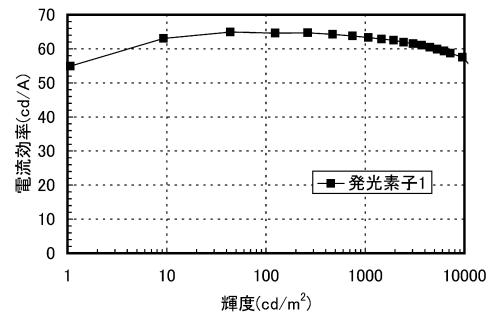
【図 12】



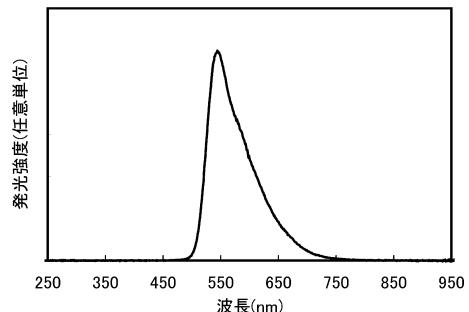
【図13】



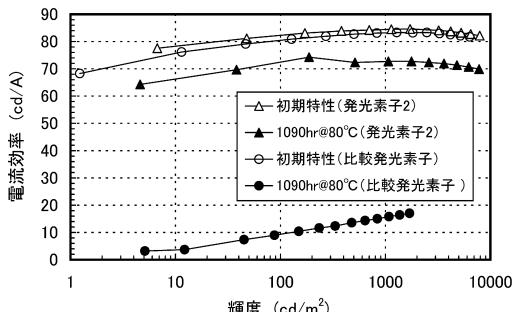
【図14】



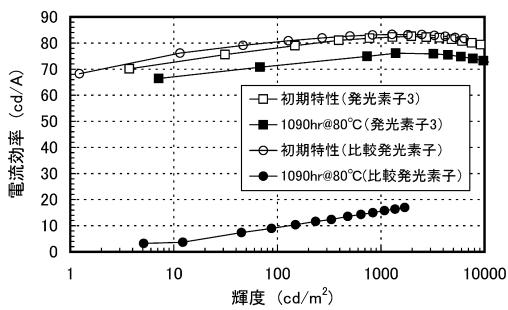
【図15】



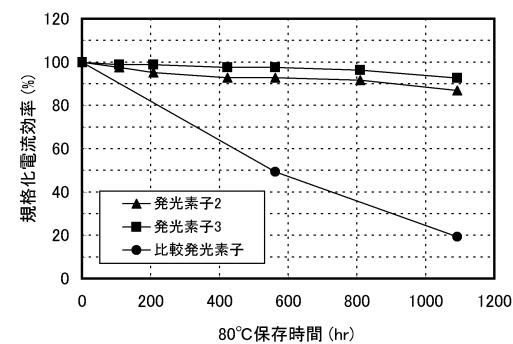
【図16】



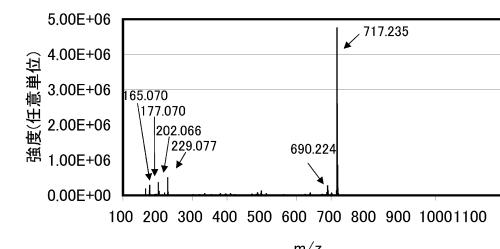
【図17】



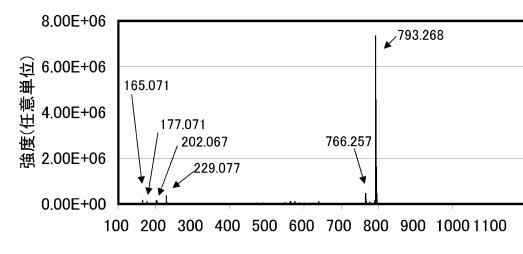
【図18】



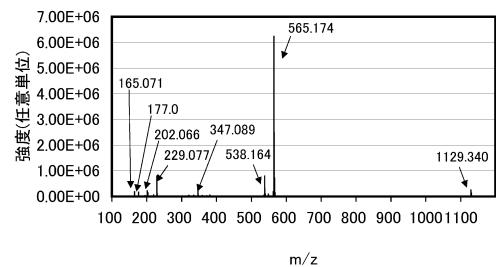
【図19】



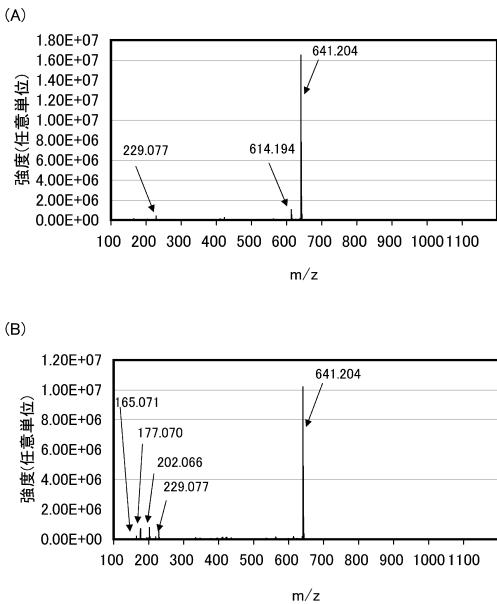
【図20】



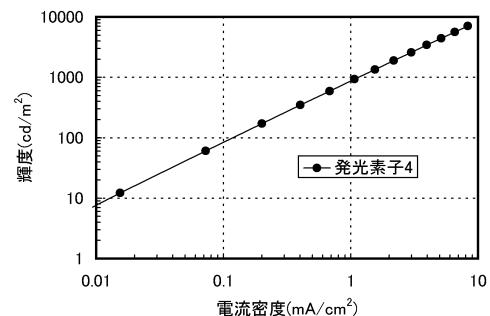
【図21】



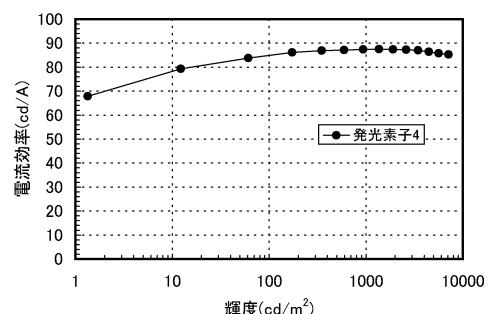
【図22】



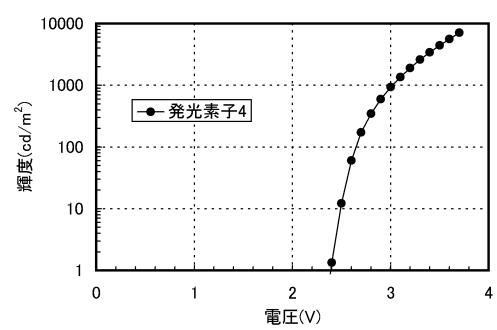
【図23】



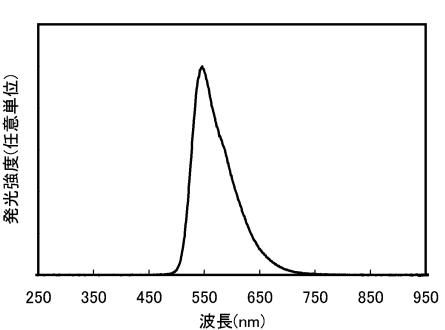
【図25】



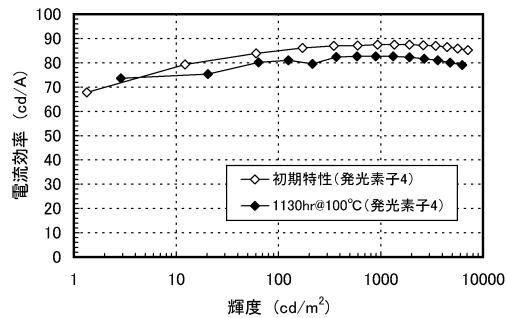
【図24】



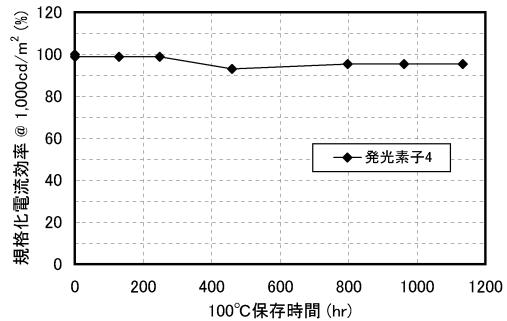
【図26】



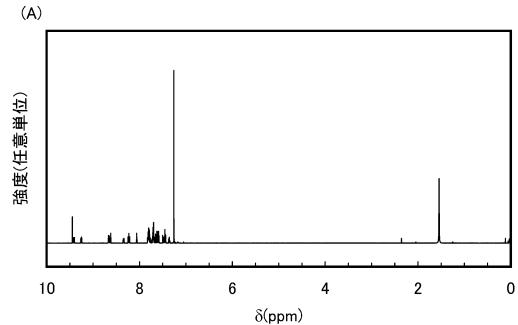
【図27】



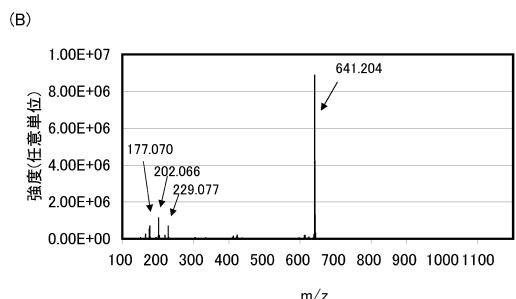
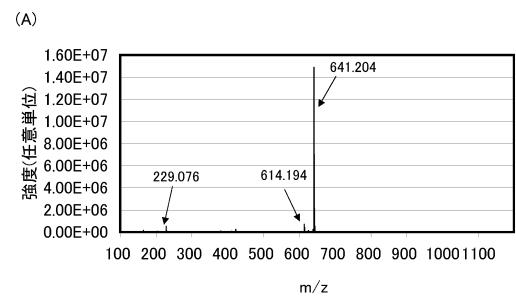
【図28】



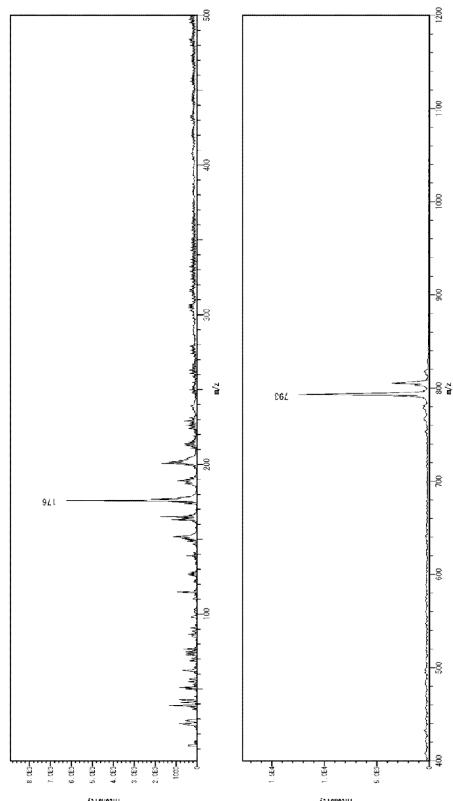
【図29】



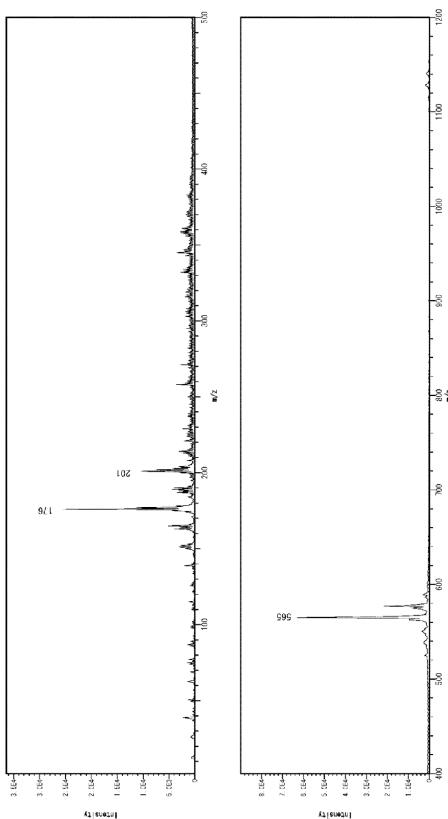
【図30】



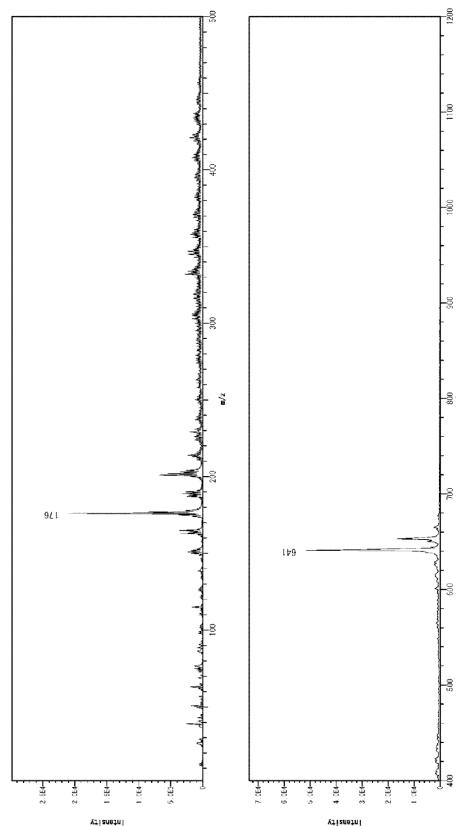
【図31】



【図3-2】

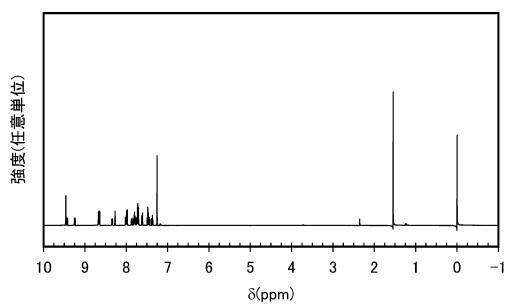


【図3-3】

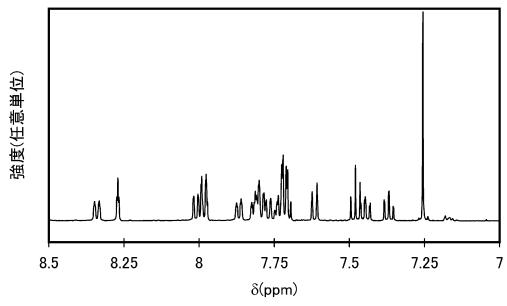


【図3-4】

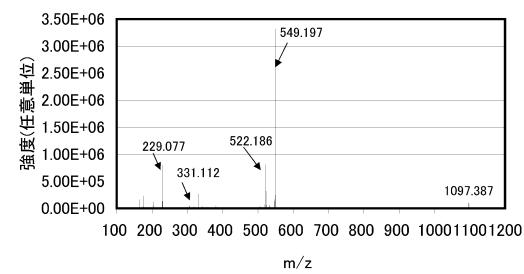
(A)



(B)



【図3-5】



---

フロントページの続き

(72)発明者 久保田 朋広  
神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内  
(72)発明者 森久保 都  
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 北野 靖  
神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

審査官 岩井 好子

(56)参考文献 国際公開第2004/094389 (WO, A1)  
特開2007-189001 (JP, A)  
特開2008-106051 (JP, A)  
特開2008-239613 (JP, A)  
特表2010-535809 (JP, A)  
国際公開第2010/132524 (WO, A1)  
韓国公開特許第10-2011-0042004 (KR, A)  
特開2012-195572 (JP, A)  
特開2012-182126 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 409/10  
C07D 405/10  
C09K 11/06  
H01L 51/50  
Caplus/REGISTRY(STN)