

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4843889号
(P4843889)

(45) 発行日 平成23年12月21日(2011.12.21)

(24) 登録日 平成23年10月21日(2011.10.21)

(51) Int.Cl.

F 1

C07D 405/14	(2006.01)	C07D 405/14	C S P
C07D 413/14	(2006.01)	C07D 413/14	
C07D 519/00	(2006.01)	C07D 519/00	3 O 1
C09K 11/06	(2006.01)	C07D 519/00	3 1 1
H01L 51/50	(2006.01)	C09K 11/06	6 5 O

請求項の数 2 (全 20 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号

特願2001-293437 (P2001-293437)

(22) 出願日

平成13年9月26日 (2001.9.26)

(65) 公開番号

特開2003-96072 (P2003-96072A)

(43) 公開日

平成15年4月3日 (2003.4.3)

審査請求日

平成20年9月3日 (2008.9.3)

(73) 特許権者 000003159

東レ株式会社

東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号

(72) 発明者 北澤 大輔

滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

(72) 発明者 小濱 亨

滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

(72) 発明者 富永 剛

滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

審査官 深谷 良範

最終頁に続く

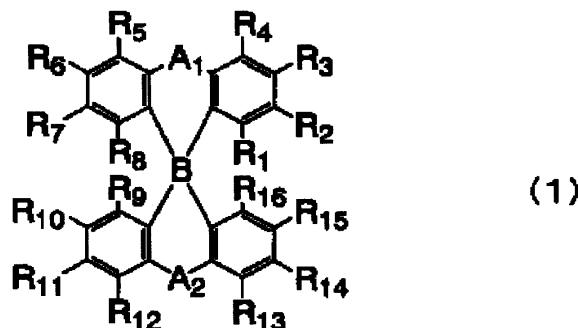
(54) 【発明の名称】発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一般式(1)で表されるスピロ系化合物。

【化 1】



10

(ここで A_1 , A_2 はそれぞれ単結合、置換あるいは無置換のアルキル鎖、エーテル鎖、チオエーテル鎖、ケトン鎖、置換あるいは無置換のアミノ鎖の中から選ばれる。ただし A_1 , A_2 である。B は炭素、ケイ素を表す。 R_1 ~ R_{16} は水素、アルキル基、アリール基、複素環基の中から選ばれる。ただし、 R_2 、 R_7 、 R_{10} 、 R_{15} のうち少なくともひとつに、キノリン骨格、ベンズキノリン骨格、フェナントロリン骨格、キノキサリン骨格、ピリジン骨格、イミダゾール骨格、オキサゾール骨格、ベンズオキサゾール骨格、オ

20

キサジアゾール骨格またはトリアゾール骨格が含まれる。)

【請求項 2】

陽極と陰極の間に発光物質が存在し、電気エネルギーにより発光する素子であって、該素子が請求項 1 に記載された一般式(1)で表されるスピロ系化合物を含むことを特徴とする発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、電気エネルギーを光に変換できる素子であって、表示素子、フラットパネルディスプレイ、バックライト、照明、インテリア、標識、看板、電子写真機、光信号発生器などの分野に利用可能な発光素子および発光素子用材料に関する。 10

【0002】

【従来の技術】

陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔が両極に挟まれた有機蛍光体内で再結合する際に発光するという有機積層薄膜発光素子の研究が近年活発に行われている。この素子は、薄型、低駆動電圧下での高輝度発光、蛍光材料を選ぶことによる多色発光が特徴であり注目を集めている。

【0003】

この研究は、コダック社の C . W . T a n g らが有機積層薄膜素子が高輝度に発光することを示して以来 (A p p l . P h y s . L e t t . 5 1 (1 2) 2 1 , p . 9 1 3 , 1 9 8 7) 、多くの研究機関が検討を行っている。コダック社の研究グループが提示した有機積層薄膜発光素子の代表的な構成は、 I T O ガラス基板上に正孔輸送性のジアミン化合物、発光層である 8 - ヒドロキシキノリンアルミニウム、そして陰極として Mg : Ag を順次設けたものであり、 1 0 V 程度の駆動電圧で 1 0 0 0 c d / m² の緑色発光が可能であった。現在の有機積層薄膜発光素子は、上記の素子構成要素の他に電子輸送層を設けているものなど構成を変えているものもあるが、基本的にはコダック社の構成を踏襲している。 20

【0004】

フルカラーディスプレイの実現を目指して、発光材料は三原色 (R G B) 摂うことが求められ、これまで緑色発光材料の研究が最も進んでおり、次いで青色発光材料が、そして最近では赤色発光材料において最も特性向上が望まれ、鋭意研究がなされている。発光材料には蛍光材料だけでなく、燐光材料なども検討されている。また、電荷輸送材料として、これまで正孔輸送材料の研究が盛んであったが、最近では電子輸送材料も熱心に検討されている。 30

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかし、従来技術に用いられる発光材料、正孔輸送材料、電子輸送材料は耐久性に劣るもののが多かった。長時間の通電による素子からの発熱により結晶化し、素子寿命が短くなってしまうものである。

【0006】

本発明は、かかる従来技術の問題を解決し、発光効率が高く、高輝度で色純度が良く、しかも耐久性に優れた発光素子を提供することを目的とするものである。 40

【0007】

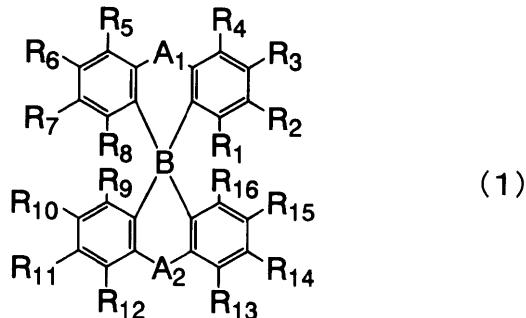
【課題を解決するための手段】

すなわち本発明は、一般式(1)で表されるスピロ系化合物であり、該化合物を陽極と陰極の間に存在する発光物質として用いた発光素子である。

【0008】

【化 2】

10



20

【0009】

(ここでA₁, A₂はそれぞれ単結合、置換あるいは無置換のアルキル鎖、エーテル鎖、チオエーテル鎖、ケトン鎖、置換あるいは無置換のアミノ鎖の中から選ばれる。ただしA₁ A₂である。Bは炭素、ケイ素を表す。R₁ ~ R₁₆は水素、アルキル基、アリール基、複素環基の中から選ばれる。ただし、R₂、R₇、R₁₀、R₁₅のうち少なくともひとつに、キノリン骨格、ベンズキノリン骨格、フェナントロリン骨格、キノキサリン骨格、ピリジン骨格、イミダゾール骨格、オキサゾール骨格、ベンズオキサゾール骨格、オキサジアゾール骨格またはトリアゾール骨格が含まれる。)

30

【0010】

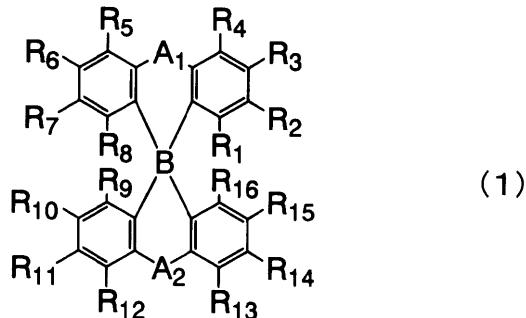
【発明の実施の形態】

本発明において新規な化合物は、下記一般式(1)で表されるスピロ系化合物である。

【0011】

【化3】

10



20

【0012】

(ここでA₁, A₂はそれぞれ単結合、置換あるいは無置換のアルキル鎖、エーテル鎖、チオエーテル鎖、ケトン鎖、置換あるいは無置換のアミノ鎖の中から選ばれる。ただしA₁, A₂である。Bは炭素、ケイ素を表す。R₁ ~ R₁₆は水素、アルキル基、シクロアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、水酸基、メルカプト基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリールエーテル基、アリールチオエーテル基、アリール基、複素環基、ハロゲン、ハロアルカン、ハロアルケン、ハロアルキン、シアノ基、アルデヒド基、カルボニル基、カルボキシル基、エステル基、カルバモイル基、アミノ基、ニトロ基、シリル基、シロキサン基、隣接置換基との間に形成される環構造の中から選ばれる。)

これらの置換基の内、アルキル基とは例えばメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基などの飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。また、シクロアルキル基とは例えばシクロプロピル、シクロヘキシル、ノルボルニル、アダマンチルなどの飽和脂環式炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。また、アラルキル基とは例えばベンジル基、フェニルエチル基などの脂肪族炭化水素を介した芳香族炭化水素基を示し、脂肪族炭化水素と芳香族炭化水素はいずれも無置換でも置換されていてもかまわない。また、アルケニル基とは例えばビニル基、アリル基、ブタジエニル基などの二重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。また、シクロアルケニル基とは例えばシクロペンテニル基、シクロペントジエニル基、シクロヘキセン基などの二重結合を含む不飽和脂環式炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。また、アルキニル基とは例えばアセチレニル基などの三重結合を含む不飽和脂肪族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。また、アルコキシ基とは例えばメトキシ基などのエーテル結合を介した脂肪族炭化水素基を示し、脂肪族炭化水素基は無置換でも置換されていてもかまわない。また、アルキルチオ基とはアルコキシ基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換されたものである。また、アリールエーテル基とは例えばフェノキシ基などのエーテル結合を介した芳香族炭化水素基を示し、芳香族炭化水素基は無置換でも置換さ

30

40

50

れてもかまわない。また、アリールチオエーテル基とはアリールエーテル基のエーテル結合の酸素原子が硫黄原子に置換されたものである。また、アリール基とは例えばフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、フェナントリル基、ターフェニル基、ピレニル基などの芳香族炭化水素基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。また、複素環基とは例えばフリル基、チエニル基、オキサゾリル基、ピリジル基、キノリル基、カルバゾリル基などの炭素以外の原子を有する環状構造基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。ハロゲンとはフッ素、塩素、臭素、ヨウ素を示す。ハロアルカン、ハロアルケン、ハロアルキンとは例えばトリフルオロメチル基などの、前述のアルキル基、アルケニル基、アルキニル基の一部あるいは全部が、前述のハロゲンで置換されたものを示し、残りの部分は無置換でも置換されていてもかまわない。アルデヒド基、カルボニル基、エステル基、カルバモイル基、アミノ基には脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素、芳香族炭化水素、複素環などで置換されたものも含み、さらに脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素、芳香族炭化水素、複素環は無置換でも置換されていてもかまわない。シリル基とは例えばトリメチルシリル基などのケイ素化合物基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。シロキサン基とは例えばトリメチルシロキサン基などのエーテル結合を介したケイ素化合物基を示し、これは無置換でも置換されていてもかまわない。また、隣接置換基との間に環構造を形成しても構わない。形成される環構造は無置換でも置換されていてもかまわない。

【0013】

$R_1 \sim R_{16}$ の少なくとも一つに、正孔輸送性置換基、電子輸送性置換基、発光性置換基、あるいは薄膜形成性置換基などの機能性置換基が含まれることが望ましい。
正孔輸送性置換基としては、後述の既知正孔輸送材料骨格があげられる。以下の骨格は無置換でも置換されていてもよく、具体的には、トリフェニルアミン、ジフェニルアミン、カルバゾール、インドールなどが好適に用いられるが特に限定されるものではない。

【0014】

電子輸送性置換基としては、後述の既知電子輸送材料骨格があげられる。以下の骨格は無置換でも置換されていてもよく、具体的には、キノリン、ベンズキノリン、フェナントロリン、キノキサン、ピリジン、イミダゾール、オキサゾール、ベンズオキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾールなどが好適に用いられるが特に限定されるものではない。

【0015】

発光性置換基としては、後述の既知発光材料（ホスト材料、ドーパント材料）骨格があげられる。以下の骨格は無置換でも置換されていてもよく、具体的には、フルオレニル、フェナンスリル、アントラニル、ピレニル、ペリレニル等の縮合芳香環や、ビフェニル、ターフェニル、クオーターフェニル等のポリバラフェニレン誘導体、ジフェニルビニルなどが好適に用いられるが特に限定されるものではない。

【0016】

薄膜形成性置換基としては、具体的には、アルキル基、アルコキシ基、アリールエーテル基などが好適に用いられるが特に限定されるものではない。

【0017】

機能性置換基の数は特に限定されるものではないが、1つ以上4つ以下が好ましく、2つあるいは4つがより好ましく、2つがさらに好ましい。

【0018】

機能性置換基の位置は特に限定されるものではないが、 R_2 、 R_4 、 R_5 、 R_7 、 R_{10} 、 R_{12} 、 R_{13} 、 R_{15} が好ましく、 R_2 、 R_7 、 R_{10} 、 R_{15} がより好ましく、 R_2 、 R_{10} がさらに好ましい。

【0019】

Bは炭素が好ましく、 A_1 、 A_2 の一つは単結合が好ましい。 A_2 が単結合とすると、 A_1 は酸素、硫黄が好ましく、酸素がより好ましい。一般式（1）で表される化合物は立体的で非対称な中心骨格を有するので、結晶化を防ぎ、薄膜安定性に優れた化合物である。

【0020】

10

20

30

40

50

一般式(1)で表される化合物は以下の方法で合成することができるが特に限定されるものではない。

【0021】

立体性非対称中心骨格の合成については、参考文献として特開平7-278537の第26頁「実施例A.出発化合物(a)9,9'-スピロビフルオレンの合成」などがあげられる。具体的には、例えばスピロキサンテンフルオレンの場合では、2-ブロモビフェニルをTHF中で金属マグネシウムを用いてグリニヤール化し、次いで室温から50度で、9-キサントンと反応させ、常法で処理し、得られたヒドロキシ体を酢酸に小量の塩酸を加えた中で加熱脱水し、常法で処理し得ることができる。同様に、9-キサントンの代わりに9-チオキサントンを用いてスピロチオキサンテンフルオレンが、N-ブチル-アクリドンよりスピロ-N-ブチル-アクリジンフルオレンが、アンスロンよりスピロジヒドロアントラセンフルオレンが、さらにスペロンよりスピロジヒドロジベンゾシクロヘプタンフルオレンを得ることができる。

【0022】

立体性非対称中心骨格への機能性置換基の導入については、直接でも良いが、まず反応性置換基を導入し、その後機能性置換基を導入する方法が好ましい。反応性置換基としては、アセチル基、ヨード基、ブロモ基などがあげられるが特に限定されるものではない。

【0023】

アセチル基の導入については、参考文献として、特開平7-278537号公報の第27頁「実施例A.出発化合物(f)2,2'-ジアセチル-9,9'-スピロビフルオレン」やHelvetica Chimica Acta, vol. 52 (1969) 第1210頁「Experimenteller Tell 2,2'-diacetyl-9,9'-spirobifluorene (IV)」などがあげられる。具体的には、立体性非対称中心骨格を1,2-ジクロロエタン中で50度塩化アセチルと塩化アルミニウムと反応させ、常法で処理し、アセチル基を導入することができる。塩化アセチルと塩化アルミニウムの当量を変えて、1~4置換体を得ることができる。

【0024】

ヨード基の導入については、参考文献として、日本化学雑誌92巻11号(1971)第1023頁「1.1.1-メチルナフタリンのヨウ素化」などがあげられる。具体的には、立体性非対称骨格を80%酢酸中で80度ヨウ素と過ヨウ素酸2水和物と反応させ、常法で処理し、ヨード基を導入することができる。

【0025】

ブロモ基の導入については、参考文献として、特開平7-278537号公報の第26頁「実施例A.出発化合物(b)2,2'-ジブロモ-9,9'-スピロビフルオレン」などがあげられる。具体的には、立体性非対称骨格を塩化メチレン中で室温で臭素と反応させ、常法で処理し、ブロモ基を導入することができる。臭素の当量を変えて、1~8置換体を得ることができる。

【0026】

反応性置換基を導入した後の立体性非対称中心骨格への機能性置換基の導入については、アセチル基からフェナントロリン基、インドール基の導入、ヨード基、ブロモ基からジフェニルアミノ基、カルバゾール基、ジフェニルエチレン基、ポリフェニレン基の導入、n-ブチル基などがあげられるが特に限定されるものではない。

【0027】

フェナントロリン基の導入については、参考文献として、Tetrahedron Letters, vol. 40 (1999). 第7312頁スキームやJ. Org. Chem. 1996, 61. 第3020頁「2-Phenyl-1,10-phenannitoroline」があげられる。具体的には、立体性非対称中心骨格のアセチル体をジオキサン中で60度8-アミノ-7-キノリンカルボアルデヒド、水酸化カリウムと反応させ、常法で処理し、フェナントロリン基を導入することができる。

【0028】

10

20

30

40

50

インドール基の導入については、参考文献として、Tetrahedron Letters, vol. 40 (1999). 第7312頁スキームなどがあげられる。具体的には、立体性非対称骨格のアセチル体と1-メチル-1-フェニルヒドラジンをエタノール中で加熱環流させ、酢酸を加えてさらに加熱環流させ、常法で処理し、ヒドラジン体を得て、これをポリリン酸中で160°で加熱し、常法で処理し、インドール基を導入することができる。

【0029】

ジフェニルエチレン基の導入については、参考文献として、S P I E , vol . 3797 . 第317頁「2 . 1 Synthesis EM1」などがあげられる。具体的には、立体性非対称骨格のプロモ体にジフェニルビニルボロン酸、炭酸ナトリウム、テトラ(トリフェニルホスフィノ)パラジウム触媒を加え、水 - トルエン中で100°で反応させ、常法で処理し、ジフェニルビニル基を導入することができる。同様にポリフェニレンを導入することができる。

【0030】

ジフェニルアミノ基の導入については、参考文献として、S P I E , vol . 3797 . 第317頁「2 . 1 Synthesis HTM1」などがあげられる。具体的には、立体性非対称骨格のプロモ体に、ジフェニルアミン、t-ブトキシナトリウム、2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1,1'-ビナフチル、酢酸パラジウムを加え、トルエン中で加熱環流させ、常法で処理し、ジフェニルアミノ基を導入することができる。同様にカルバゾリル基を導入することができる。

10

20

【0031】

n-ブチル基の導入については、具体的には、立体性非対称骨格のプロモ体にTHF中室温でn-ブチルリチウムと反応させ、常法で処理し、n-ブチル基を導入することができる。立体性非対称骨格のプロモ体からの上述の機能性置換基導入の際に残留する未反応プロモ基を処理することができ、薄膜形成性にも有利である。

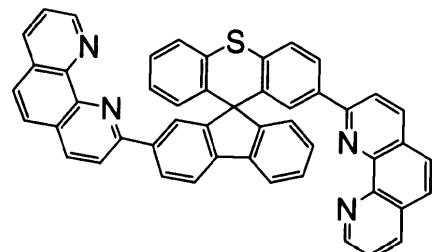
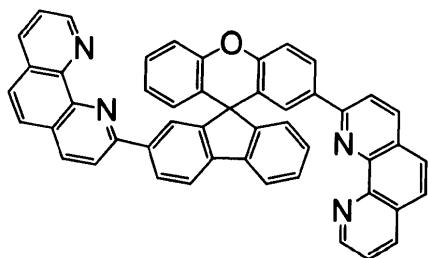
【0032】

上記のスピロ系化合物として、具体的には下記のような構造があげられるが特に限定されるものではない。

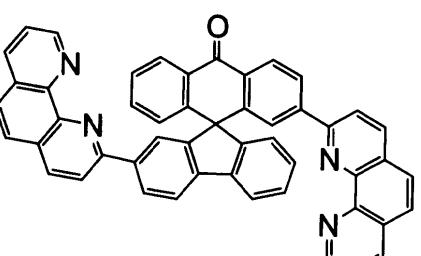
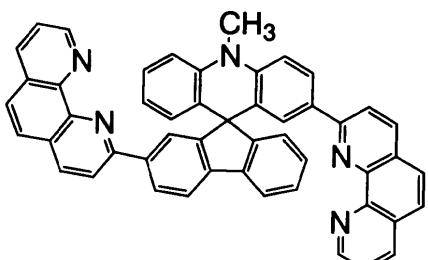
【0033】

【化4】

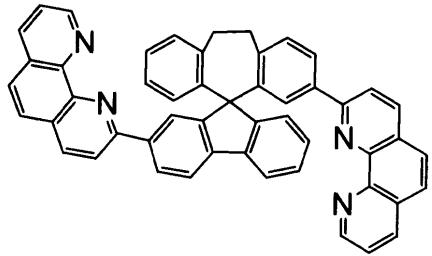
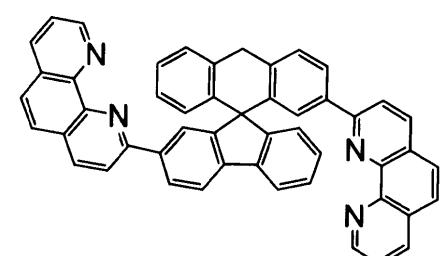
30



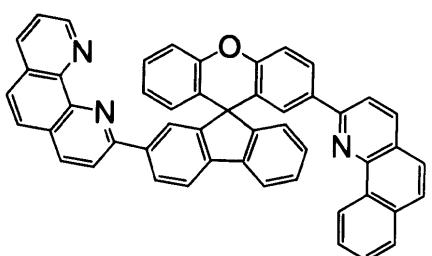
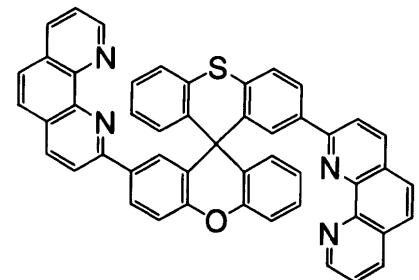
10



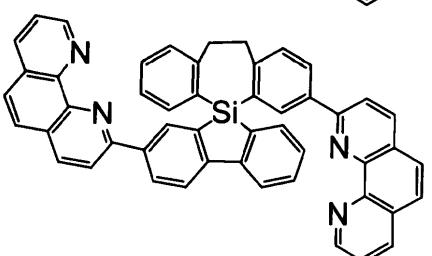
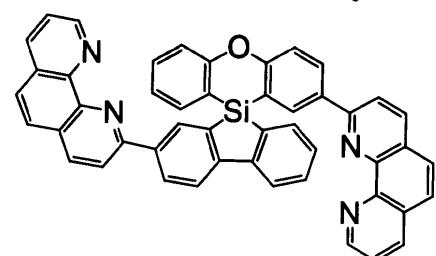
20



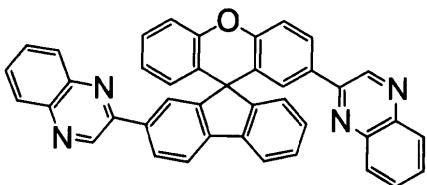
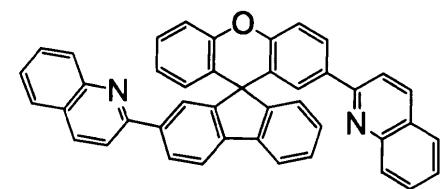
30



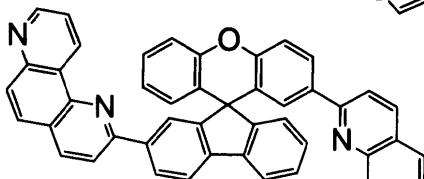
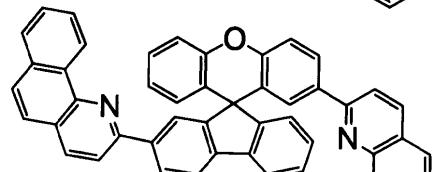
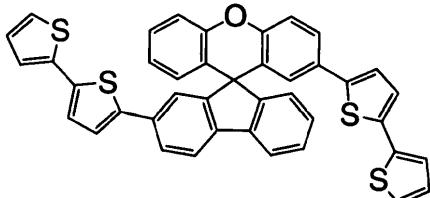
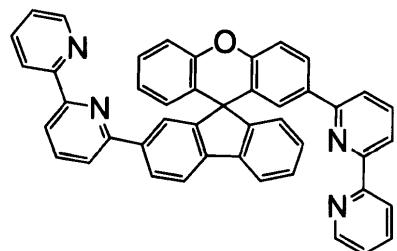
40



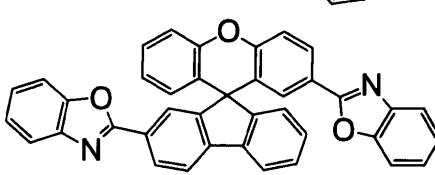
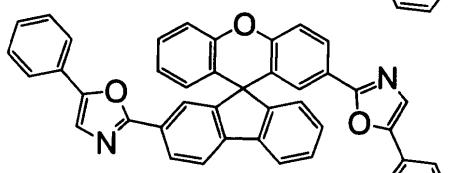
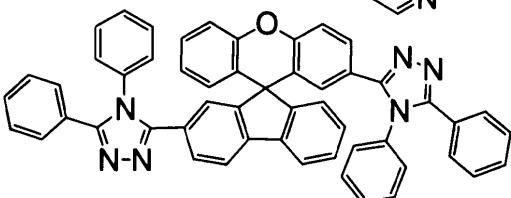
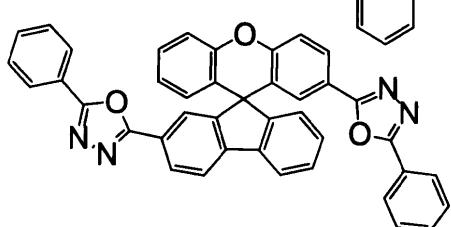
【0034】
【化5】



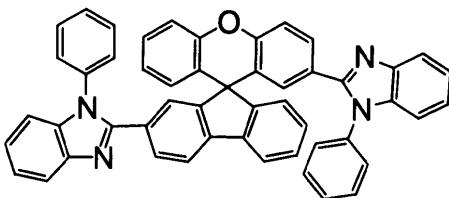
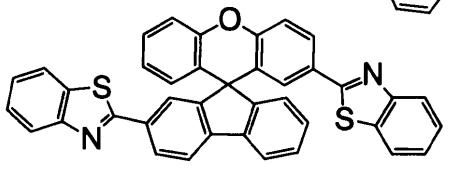
10



20



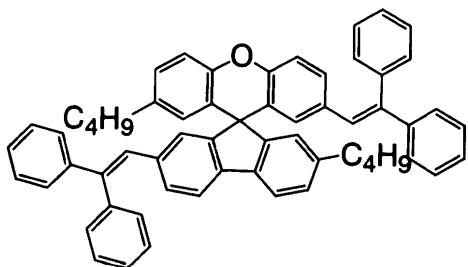
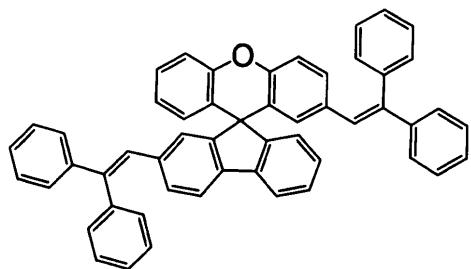
30



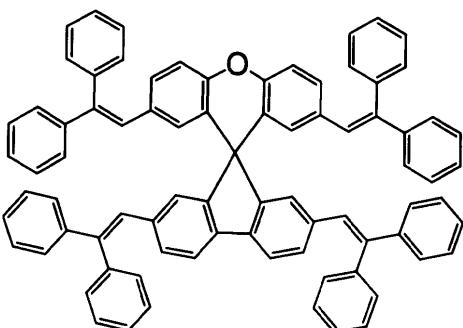
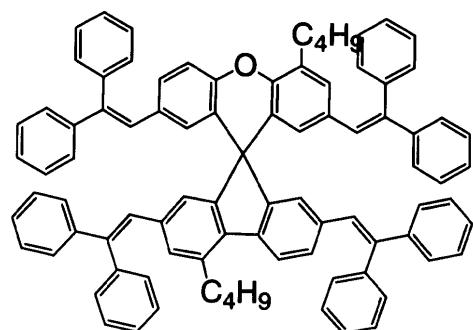
40

【0035】

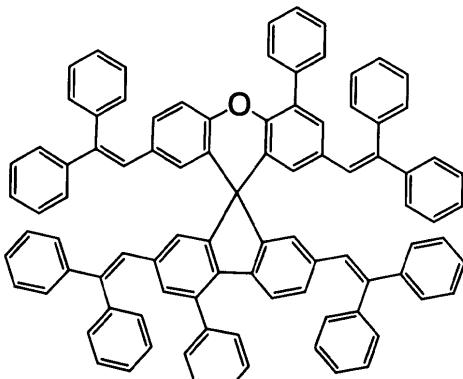
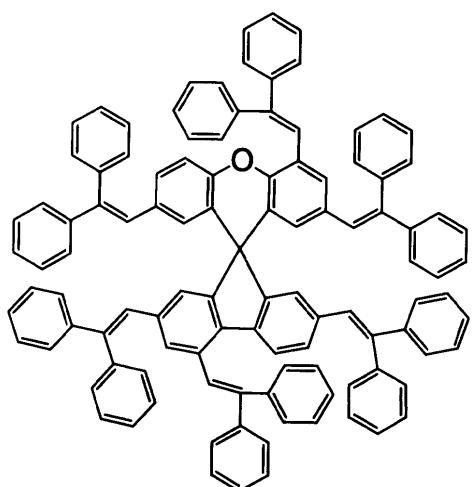
【化6】



10



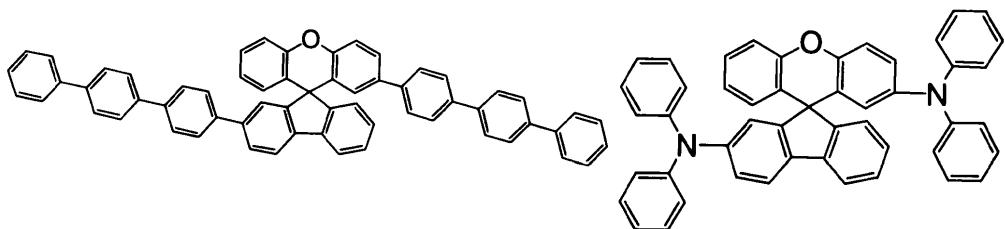
20



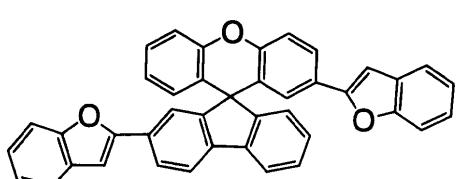
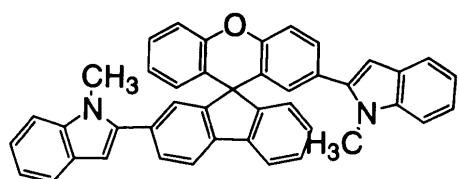
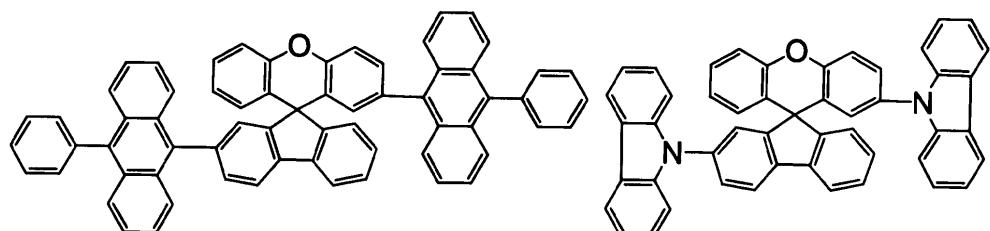
30

40

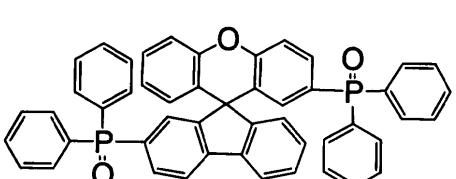
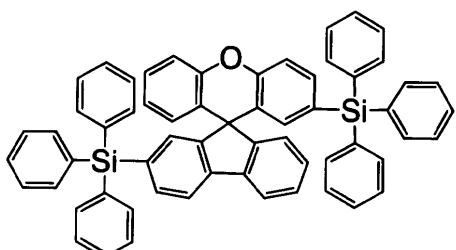
【0036】
【化7】



10



20



30

40

【0037】

また、本発明は上記一般式(1)で表される化合物を、陽極と陰極の間に存在する発光物質として用いた発光素子である。

【0038】

本発明の発光素子において陽極は、光を取り出すために透明であれば酸化錫、酸化インジウム、酸化錫インジウム(ITO)などの導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロムなどの金属、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリンなどの導電性ポリマなど特に限定されるものでないが、ITOガラスやネサガ

50

ラスを用いることが特に望ましい。透明電極の抵抗は素子の発光に十分な電流が供給できればよいので限定されないが、素子の消費電力の観点からは低抵抗であることが望ましい。例えば 300 / 以下の ITO 基板であれば素子電極として機能するが、現在では 10 / 程度の基板の供給も可能になっていることから、低抵抗品を使用することが特に望ましい。ITO の厚みは抵抗値に合わせて任意に選ぶ事ができるが、通常 100 ~ 300 nm の間で用いられることが多い。また、ガラス基板はソーダライムガラス、無アルカリガラスなどが用いられ、また厚みも機械的強度を保つのに十分な厚みがあればよいので、0.5 mm 以上あれば十分である。ガラスの材質については、ガラスからの溶出イオンが少ない方がよいので無アルカリガラスの方が好ましいが、SiO₂ などのバリアコートを施したソーダライムガラスも市販されているのでこれを使用できる。ITO 膜形成方法は、電子線ビーム法、スパッタリング法、化学反応法など特に制限を受けるものではない。
10

【0039】

本発明の発光素子において陰極は、電子を本有機物層に効率良く注入できる物質であれ特に限定されないが、一般に白金、金、銀、銅、鉄、錫、亜鉛、アルミニウム、インジウム、クロム、リチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウムなどがあげられるが、電子注入効率をあげて素子特性を向上させるためにはリチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウムまたはこれら低仕事関数金属を含む合金が有効である。しかし、これらの低仕事関数金属は、一般に大気中で不安定であることが多く、例えば、有機層に微量のリチウムやセシウム、マグネシウム（真空蒸着の膜厚計表示で 1 nm 以下）をドーピングして安定性の高い電極を使用する方法が好ましい例として挙げができるが、フッ化リチウムのような無機塩の使用も可能であることから特にこれらに限定されるものではない。更に電極保護のために白金、金、銀、銅、鉄、錫、アルミニウム、インジウムなどの金属、またはこれら金属を用いた合金、そしてシリカ、チタニア、窒化ケイ素などの無機物、ポリビニルアルコール、塩化ビニル、炭化水素系高分子などを積層することが好ましい例として挙げられる。これらの電極の作製法も抵抗加熱、電子線ビーム、スパッタリング、イオンプレーティング、コーティングなど導通を取ることができれば特に制限されない。
20

【0040】

本発明の発光素子において発光物質とは、1) 正孔輸送層 / 発光層、2) 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層、3) 発光層 / 電子輸送層、そして、4) 以上の組合せ物質を一層に混合した形態のいずれであってもよい。即ち、素子構成としては、上記 1) ~ 3) の多層積層構造の他に 4) のように発光材料単独または発光材料と正孔輸送材料や電子輸送材料を含む層を一層設けるだけでもよい。さらに、本発明の発光素子における発光物質は自ら発光するもの、その発光を助けるもののいずれにも該当し、発光に関与している化合物、層などを指すものである。
30

【0041】

本発明の発光素子において正孔輸送性材料は、電界を与えられた電極間ににおいて陽極からの正孔を効率良く輸送することが必要で、正孔注入効率が高く、注入された正孔を効率良く輸送することが望ましい。そのためにはイオン化ポテンシャルが小さく、しかも正孔移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが要求される。
40

【0042】

このような条件を満たす物質として、本発明における立体性非対称化合物や、N, N' - デフェニル - N, N' - ジ(3-メチルフェニル) - 4, 4' - デフェニル - 1, 1' - デアミンや、N, N' - デナフチル - N, N' - デフェニル - 4, 4' - デフェニル - 1, 1' - デアミンなどのトリフェニルアミン類、ビス(N-アリルカルバゾール)や、ビス(N-アルキルカルバゾール)類などのカルバゾール類、インドール誘導体、ピラゾリン誘導体、スチルベン系化合物、ヒドラゾン系化合物、オキサジアゾール誘導体やフタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体に代表される複素環化合物、ポリマー系では前記單
50

量体を側鎖に有するポリカーボネートやスチレン誘導体、ポリビニルカルバゾール、ポリシランなどがあげられるが特に限定されるものではない。

【0043】

本発明における発光材料はホスト材料のみでも、ホスト材料とドーパント材料の組み合わせでも、いずれであってもよい。また、ドーパント材料はホスト材料の全体に含まれていても、部分的に含まれていても、いずれであってもよい。ドーパント材料は積層されても、分散されていても、いずれであってもよい。

【0044】

本発明の発光素子において発光材料は、正孔輸送層あるいは直接陽極から受けとった正孔と、電子輸送層あるいは直接陰極から受け取った電子を効率よく再結合させることが必要で、ドーパント材料を含む場合は、再結合のエネルギーをドーパント材料に効率よく移動させることが必要である。さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが要求される。10

【0045】

このような条件を満たす物質として、本発明における立体性非対称化合物や、以前から発光体として知られていたアントラセン、フェナンスレン、ピレン、ペリレン、クリセンなどの縮合環誘導体、トリス(8-キノリノラト)アルミニウムを始めとするキノリノール誘導体の金属錯体、ベンズオキサゾール誘導体、スチルベン誘導体、ベンズチアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、チオフェン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体やジスチリルベンゼン誘導体などのビススチリル誘導体、キノリノール誘導体と異なる配位子を組み合わせた金属錯体、オキサジアゾール誘導体金属錯体、ベンズアゾール誘導体金属錯体、クマリン誘導体、ピロロピリジン誘導体、ピロロピロール誘導体、シロール誘導体、ペリノン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、ポリマー系では、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、そして、ポリチオフェン誘導体などがあげられるが特に限定されるものではない。20

【0046】

発光材料に添加するドーパント材料は、ホスト材料からの再結合エネルギーを効率よく受け取ることが必要で、量子収率が高く、しかも濃度消光を起こしにくいことが望ましい。さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが要求される。30

【0047】

このような条件を満たす物質として、本発明における立体性非対称化合物や、従来から知られている、フェナンスレン、アントラセン、ピレン、テトラセン、ペンタセン、ペリレン、ナフトピレン、ジベンゾピレン、ルブレンなどの縮合環誘導体、ベンズオキサゾール誘導体、ベンズチアゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ベンズトリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ピラゾリン誘導体、スチルベン誘導体、チオフェン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体やジスチリルベンゼン誘導体などのビススチリル誘導体、ジアザインダセン誘導体、フラン誘導体、ベンゾフラン誘導体、フェニルイソベンゾフラン、ジメシチルイソベンゾフラン、ジ(2-メチルフェニル)イソベンゾフラン、ジ(2-トリフルオロメチルフェニル)イソベンゾフラン、フェニルイソベンゾフランなどのイソベンゾフラン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、7-ジアルキルアミノクマリン誘導体、7-ピペリジノクマリン誘導体、7-ヒドロキシクマリン誘導体、7-メトキシクマリン誘導体、7-アセトキシクマリン誘導体、3-ベンズチアゾリルクマリン誘導体、3-ベンズイミダゾリルクマリン誘導体、3-ベンズオキサゾリルクマリン誘導体などのクマリン誘導体、ジシアノメチレンピラン誘導体、ジシアノメチレンチオピラン誘導体、ポリメチン誘導体、シアニン誘導体、オキソベンズアンスラセン誘導体、キサンテン誘導体、ローダミン誘導体、フルオレセイン誘導体、ピリリウム誘導体、カルボスチリル誘導体、40

アクリジン誘導体、オキサジン誘導体、フェニレンオキサイド誘導体、キナクリドン誘導体、キナゾリン誘導体、ピロロピリジン誘導体、フロピリジン誘導体、1, 2, 5-チアジアゾロピレン誘導体、ピロメテン誘導体、ペリノン誘導体、ピロロピロール誘導体、スクアリリウム誘導体、ビオラントロン誘導体、フェナジン誘導体、アクリドン誘導体、ジアザフラビン誘導体などがあげられるが、特に限定されるものではない。

【0048】

また、ドーパント材料として上記蛍光性（一重項発光）材料だけでなく、熒光性（三重項発光）材料も好ましく用いられる。具体的には、ポルフィリン白金錯体やトリス（2-フェニルピリジル）イリジウム錯体、トリス{2-(2-チオフェニル)ピリジル}イリジウム錯体、トリス{2-(2-ベンゾチオフェニル)ピリジル}イリジウム錯体、トリス(2-フェニルベンゾオキサゾール)イリジウム錯体、トリスベンゾキノリンイリジウム錯体、ビス(2-フェニルピリジル)(アセチルアセトナート)イリジウム錯体、ビス{2-(2-チオフェニル)ピリジル}イリジウム錯体、ビス{2-(2-ベンゾチオフェニル)ピリジル}(アセチルアセトナート)イリジウム錯体、ビス(2-フェニルベンゾチアゾール)(アセチルアセトナート)イリジウム錯体、ビス(2-フェニルベンゾオキサゾール)(アセチルアセトナート)イリジウム錯体、ビスベンゾキノリン(アセチルアセトナート)イリジウム錯体などがあげられるが特に限定されるものではない。

10

【0049】

本発明の発光素子において電子輸送性材料は、電界を与えられた電極間において陰極からの電子を効率良く輸送することが必要で、電子注入効率が高く、注入された電子を効率良く輸送することが望ましい。そのためには電子親和力が大きく、しかも電子移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが要求される。しかしながら、正孔と電子のバランスを考えた場合に、陽極からの正孔が再結合せずに陰極側へ流れるのを効率よく阻止できる役割を主に果たす場合には、電子輸送能力がそれ程高くなくても、発光効率を向上させる効果は電子輸送能力が高い材料と同等に有する。したがって、本発明における電子輸送層は、正孔の移動を効率よく阻止できる正孔阻止層も同義のものとして含まれる。

20

【0050】

このような条件を満たす物質として、本発明における立体性非対称化合物や、8-ヒドロキシキノリンアルミニウムに代表されるキノリノール誘導体金属錯体、トロポロン金属錯体、フラボノール金属錯体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、ナフタレン導体、クマリノン誘導体、ピリジン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ベンゾキノリン誘導体、フェナントロリン誘導体、チオフェン誘導体、オキサゾール誘導体、チアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、ベンズオキサゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ジフェニルリンオキサイド誘導体、シロール誘導体、トリフェニルシラン誘導体、アルダジン誘導体、ビススチリル誘導体、ピラジン誘導体などがあげられるが特に限定されるものではない。

30

【0051】

以上の正孔輸送層、発光層、電子輸送層に用いられる材料は単独または二種類以上の物質を積層、混合して各層を形成することができるが、高分子結着剤としてポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルファン、ポリフェニレンオキサイド、ポリブタジエン、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリサルファン、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン樹脂などの溶剤可溶性樹脂や、フェノール樹脂、キシレン樹脂、石油樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂などの硬化性樹脂などに分散させて用いることも可能である。

40

【0052】

本発明の発光素子において発光物質の形成方法は、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパ

50

ツタリング、分子積層法、コーティング法など特に限定されるものではないが、通常は、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着が特性面で好ましい。層の厚みは、発光物質の抵抗値にもよるので限定することはできないが、1~1000 nmの間から選ばれる。

【0053】

本発明において電気エネルギーとは主に直流電流を指すが、パルス電流や交流電流を用いることも可能である。電流値および電圧値は特に制限はないが、素子の消費電力、寿命を考慮するとできるだけ低いエネルギーで最大の輝度が得られるようにするべきである。

【0054】

本発明における発光素子はマトリクスタイプとして用いるのに適している。本発明においてマトリクスとは、表示のための画素が格子状に配置されたものをいい、画素の集合で文字や画像を表示する。画素の形状、サイズは用途によって決まる。例えばパソコン、モニター、テレビの画像および文字表示には、通常一辺が300 μm以下の四角形の画素が用いられるし、表示パネルのような大型ディスプレイの場合は、一辺がmmオーダーの画素を用いることになる。モノクロ表示の場合は、同じ色の画素を配列すればよいが、カラー表示の場合には、赤、緑、青の画素を並べて表示させる。この場合、典型的にはデルタタイプとストライプタイプがある。そして、このマトリクスの駆動方法としては、線順次駆動方法やアクティブマトリックスのどちらでもよい。線順次駆動の方が構造が簡単であるという利点があるが、動作特性を考慮した場合、アクティブマトリックスの方が優れる場合があるので、これも用途によって使い分けることが必要である。

【0055】

本発明における発光素子はセグメントタイプとして用いるのに適している。本発明においてセグメントタイプとは、予め決められた情報を表示するようにパターンを形成し、決められた領域を発光させることになる。例えば、デジタル時計や温度計における時刻や温度表示、オーディオ機器や電磁調理器などの動作状態表示、自動車のパネル表示などがあげられる。そして、前記マトリクス表示とセグメント表示は同じパネルの中に共存してもよい。

【0056】

本発明における発光素子はバックライトとして用いるのに適している。本発明においてバックライトとは、主に自発光しない表示装置の視認性を向上させる目的に使用され、液晶表示装置、時計、オーディオ機器、自動車パネル、表示板、標識などに使用される。特に液晶表示装置、中でも薄型化が課題となっているパソコン用途のバックライトとしては、従来方式のものが蛍光灯や導光板からなっているため薄型化が困難であることを考えると本発明におけるバックライトは、薄型、軽量が特徴になる。

【0057】

【実施例】

以下、実施例および比較例をあげて本発明を説明するが、本発明はこれらの例によって限定されるものではない。

【0058】

実施例1（立体性非対称骨格：スピロキサンテンフルオレンの合成）

2 - プロモビフェニル14.8 g を THF 中で金属マグネシウム2.2 g を用いてグリニヤール化し、次いで室温から50度で、9 - キサントン12.3 g と反応させ、常法で処理し、9 - (2 - ビフェニル) - 9 - キサンテノールを得た。これを酢酸に小量の塩酸を加えた中で加熱脱水し、常法で処理し、スピロキサンテンフルオレン8.5 g を得た。
¹H - NMR (CDCl₃, ppm) : 6.4 (d : 2H)、6.8 (t : 2H)、7.2 (m : 8H)、7.4 (t : 2H)、7.8 (d : 2H)

実施例2（立体性非対称骨格：スピロチオキサンテンフルオレンの合成）

2 - プロモビフェニル11.9 g を THF 中で金属マグネシウム1.7 g を用いてグリニヤール化し、次いで室温から50度で、2,4 - ジエチル - 9 - チオキサントン13.4 g と反応させ、常法で処理し、2,4 - ジエチル - 9 - (2 - ビフェニル) - 9 - チオキサンテノールを得た。これを酢酸に小量の塩酸を加えた中で加熱脱水し、常法で処理し、

10

20

30

40

50

スピロ - 2 , 4 - ジエチルチオキサンテンフルオレン 13 . 8 g を得た。 ^1H - NMR (C D C 1₃, ppm) : 0 . 9 (t : 3 H)、 1 . 4 (t : 3 H)、 2 . 3 (m , 2 H)、 2 . 9 (m , 2 H)、 6 . 2 (s , 1 H)、 6 . 5 (d : 1 H)、 6 . 8 (t , 1 H)、 6 . 9 (s , 1 H)、 7 . 1 (t , 1 H)、 7 . 2 (m : 2 H)、 7 . 4 (m , 3 H)、 7 . 6 (d : 2 H)、 7 . 8 (m , 2 H)。

【 0 0 5 9 】

実施例 3 (立体性非対称骨格への導入基 : アセチル基の付加)

スピロキサンテンフルオレン 10 . 29 g を 1 , 2 - ジクロロエタン中で 50 で塩化アセチル 5 . 4 g と塩化アルミニウム 9 . 1 g と反応させ、常法で処理し、スピロ - 2 - アセチルキサンテン - 2 - アセチルフルオレン 15 . 8 g を得た。 ^1H - NMR (C D C 1₃, ppm) : 2 . 3 (s : 3 H)、 2 . 5 (s : 3 H)、 6 . 3 (d : 1 H)、 6 . 8 (t : 1 H)、 7 . 0 (s : 1 H)、 7 . 1 - 7 . 3 (m : 5 H)、 7 . 4 (t : 1 H)、 7 . 7 (s : 1 H)、 7 . 8 (d : 1 H)、 7 . 9 (d : 2 H)、 8 . 0 (d : 1 H)。

【 0 0 6 0 】

実施例 4 (立体性非対称骨格への機能性置換基 : フェナントロリン導入)

スピロ - 2 - アセチルキサンテン - 2 - アセチルフルオレン 5 . 0 g をジオキサン中で 60 で 8 - アミノ - 7 - キノリンカルボアルデヒド 5 . 2 g 、水酸化カリウム 5 . 0 g と反応させ、常法で処理し、スピロ - 2 - フェナントロリンキサンテン - 2 - フェナントロリンフルオレン 5 . 8 g を得た。 ^1H - NMR (C D C 1₃, ppm) : 6 . 5 (d , 1 H)、 6 . 8 (t , 1 H)、 7 . 1 (s , 1 H)、 7 . 2 - 7 . 3 (m , 5 H)、 7 . 4 (m , 1 H)、 7 . 5 - 7 . 7 (m , 8 H)、 7 . 9 (t , 2 H)、 8 . 1 (t , 2 H)、 8 . 2 (m , 3 H)、 8 . 5 (d , 1 H)、 8 . 8 (d , 1 H)、 9 . 2 (d , 2 H)。

【 0 0 6 1 】

実施例 5

I T O 透明導電膜を 150 nm 堆積させたガラス基板 (旭硝子 (株) 製、 15 / 、電子ビーム蒸着品) を 30 × 40 mm に切断、エッチングを行った。得られた基板をアセトン、 " セミコクリン 56 " (フルウチ化学 (株) 製) で各々 15 分間超音波洗浄してから、超純水で洗浄した。続いてイソプロピルアルコールで 15 分間超音波洗浄してから熱メタノールに 15 分間浸漬させて乾燥させた。この基板を素子を作製する直前に 1 時間 UV - オゾン処理し、真空蒸着装置内に設置して、装置内の真空度が 5×10^{-5} Pa 以下になるまで排気した。抵抗加熱法によって、まず正孔注入材料として、銅フタロシアニンを 20 nm 、正孔輸送材料として、 4 , 4 ' - ビス (N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ) ピフェニルを 100 nm 蒸着した。次に発光材料として、トリスキノリノールアルミニウム錯体 (Alq3) を 50 nm の厚さに積層した。次に電子輸送材料として、スピロ - 2 - フェナントロリンキサンテン - 2 - フェナントロリンフルオレンを 100 nm の厚さに積層した。次にリチウムを 0 . 5 nm 有機層にドーピングした後、アルミニウムを 200 nm 蒸着して陰極とし、 5 × 5 mm 角の素子を作製した。ここで言う膜厚は水晶発振式膜厚モニター表示値である。この発光素子からは、発光波長 530 nm 、輝度 20000 カンデラ / 平方メートルの高輝度緑色発光が得られた。この発光素子の耐久性は非常に優れたものであり、 1000 時間で 80 % 以上の輝度を保持した。

【 0 0 6 2 】

また、この発光素子を真空セル内で 1 mA パルス駆動 (Duty 比 1 / 60 、パルス時の電流値 60 mA) させたところ、良好な発光が確認された。

【 0 0 6 3 】

比較例 1

電子輸送材料として 2 , 9 - ジメチル - 4 , 7 - ジフェニル - 1 , 10 - フェナントロリン (BTCPN) を用いた他は実施例 1 と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子の耐久性は著しく短く、 100 時間で輝度が半減した。

10

20

30

40

50

【0064】

実施例 6

発光材料として、ホスト材料としてトリスキノリノールアルミニウム錯体 (A1q3) を、ゲスト材料として4-(ジシアノメチレン)-2-tブチル-6-(1,1,7,7-テトラメチルジュロリジル-9-エニル)-4H-ピラン (DCJTB) をドープ濃度が2%になるように用いた他は実施例5と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは、発光波長630nm、輝度10000カンデラ/平方メートルの高輝度赤橙色発光が得られた。この発光素子の耐久性は非常に優れたものであり、1000時間で80%以上の輝度を保持した。

【0065】

10

実施例 7

ホスト材料として、4,4'-ビス(ジフェニルビニル)ビフェニル (DPVBi) を用いた他は実施例5と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは、発光波長460nm、輝度10000カンデラ/平方メートルの高輝度青色発光が得られた。

【0066】

比較例 2

電子輸送材料としてトリスキノリノールアルミニウム錯体 (A1q3) を用いた他は実施例7と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは発光材料からの発光に加えて電子輸送材料からの緑色発光が観察され、色純度が著しく悪かった。

【0067】

20

実施例 8

ホスト材料として、1,4-ジケト-2,5-ビス(3,5-ジメチルベンジル)-3,6-ビス(4-メチルフェニル)ピロロ[3,4-c]ピロールを、ゲスト材料として4,4-ジフルオロ-1,3,5,7-テトラフェニル-4-ボラ-3a,4a-ジアザ-インダセンをドープ濃度が1%になるように用いた他は実施例5と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは、発光波長610nm、輝度10000カンデラ/平方メートルの高輝度赤色発光が得られた。

【0068】

比較例 3

電子輸送材料としてトリスキノリノールアルミニウム錯体 (A1q3) を用いた他は実施例8と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは発光材料からの赤色発光に加えて電子輸送材料からの緑色発光が観察され、色純度が著しく悪かった。

30

【0069】

実施例 9

ホスト材料として、1,4-ジケト-2,5-ビス(3,5-ジ-t-ブチルベンジル)-3,6-ビス(3-メトキシフェニル)ピロロ[3,4-c]ピロールを、ゲスト材料として4,4-ジフルオロ-1,3,5,7-テトラ(4-メチルフェニル)-8-フェニル-4-ボラ-3a,4a-ジアザ-インダセンをドープ濃度が1%になるように用いた他は実施例5と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは、発光波長610nm、輝度10000カンデラ/平方メートルの高輝度赤色発光が得られた。

40

【0070】

実施例 10

ホスト材料として、1,4-ジケト-2,5-ビス(3,5-ジ-t-ブチルベンジル)-3,6-ビス(4-ビフェニル)ピロロ[3,4-c]ピロールを、ゲスト材料として4,4-ジフルオロ[3-フェニル-1-[(3-フェニル-2H-ベンゾ[c]イソインドール-1-イル)メチレン]-1H-ベンゾ[c]イソインドレート-N1,N2]ボランをドープ濃度が1%になるように用いた他は実施例5と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは、発光波長635nm、輝度10000カンデラ/平方メートルの高輝度赤色発光が得られた。

【0071】

50

実施例 1 1

ホスト材料として、1，4-ジケト-2，5-ビス(4-メチルベンジル)-3，6-ビス(1-ナフチル)ピロ口[3，4-c]ピロールを、ゲスト材料として4，4-ジフルオロ-1，3，5，7-テトラ(4-ヘキシリルフェニル)-4-ボラ-3a，4a-ジアザ-インダセンをドープ濃度が1%になるように用いた他は実施例5と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは、発光波長610nm、輝度10000カンデラ/平方メートルの高輝度赤色発光が得られた。

【0072】**実施例 1 2**

ホスト材料として、1，4-ジケト-2，5-ジベンジル-3，6-ビス(1-ナフチル)ピロ口[3，4-c]ピロールを、ゲスト材料として4，4-ジフルオロ-1，3，5，7-テトラ(4-ヘキシリルフェニル)-8-フェニル-4-ボラ-3a，4a-ジアザ-インダセンをドープ濃度が1%になるように用いた他は実施例5と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは、発光波長610nm、輝度10000カンデラ/平方メートルの高輝度赤色発光が得られた。10

【0073】**実施例 1 3**

ホスト材料として、1，4-ジケト-2，5-ジエチル-3，6-ビス(1-ナフチル)ピロ口[3，4-c]ピロールを、ゲスト材料として4，4-ジフルオロ-1，3，5，7-テトラ(4-メチルフェニル)-8-(1-ナフチル)-4-ボラ-3a，4a-ジアザ-インダセンをドープ濃度が1%になるように用いた他は実施例1と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは、発光波長610nm、輝度10000カンデラ/平方メートルの高輝度赤色発光が得られた。20

【0074】**実施例 1 4**

ホスト材料として、1，4-ジケト-2，5-ビス(3，5-ジメチルベンジル)-3，6-ビス(4-エチルフェニル)ピロ口[3，4-c]ピロールを、ゲスト材料として4，4-ジフルオロ-1，3，5，7-テトラ(4-ブチルフェニル)-8-フェニル-4-ボラ-3a，4a-ジアザ-インダセンをドープ濃度が1%になるように用いた他は実施例5と全く同様にして発光素子を作製した。この発光素子からは、発光波長610nm、輝度10000カンデラ/平方メートルの高輝度赤色発光が得られた。30

【0075】**実施例 1 5**

ITO透明導電膜を150nm堆積させたガラス基板(旭硝子(株)製、15 / 、電子ビーム蒸着品)を30×40mmに切断、フォトリソグラフィ法によって300μmピッチ(残り幅270μm)×32本のストライプ状にパターン加工した。ITOストライプの長辺方向片側は外部との電気的接続を容易にするために1.27mmピッチ(開口部幅800μm)まで広げてある。得られた基板をアセトン、"セミコクリン56"で各々15分間超音波洗浄してから、超純水で洗浄した。続いてイソプロピルアルコールで15分間超音波洗浄してから熱メタノールに15分間浸漬させて乾燥させた。この基板を素子を作製する直前に1時間UV-オゾン処理し、真空蒸着装置内に設置して、装置内の真空中で5×10⁻⁴Pa以下になるまで排気した。抵抗加熱法によって、まず正孔輸送材料として4，4'-ビス(N-(m-トリル)-N-フェニルアミノ)ビフェニルを150nm蒸着し、発光材料としてトリスキノリノールアルミニウム錯体を50nmの厚さに蒸着した。次に電子輸送材料として、スピロ-2-フェナントロリンキサンテン-2-フェナントロリンフルオレンを100nmの厚さに積層した。ここで言う膜厚は水晶発振式膜厚モニター表示値である。次に厚さ50μmのコバール板にウェットエッティングによって16本の250μmの開口部(残り幅50μm、300μmピッチに相当)を設けたマスクを、真空中でITOストライプに直交するようにマスク交換し、マスクとITO基板が密着するように裏面から磁石で固定した。そしてリチウムを0.5nm有機層にドーピングし4050

た後、アルミニウムを200nm蒸着して32×16ドットマトリクス素子を作製した。本素子をマトリクス駆動させたところ、クロストークなく文字表示できた。

【0076】

【発明の効果】

本発明は、発光効率が高く、高輝度で色純度が良く、しかも耐久性に優れた発光素子を提供できるものである。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I	
C 0 9 K	11/06 6 5 5
C 0 9 K	11/06 6 6 0
H 0 5 B	33/14 B
H 0 5 B	33/22 B
H 0 5 B	33/22 D

(56)参考文献 特開2001-210474(JP,A)

特開2001-210473(JP,A)

特開平11-273863(JP,A)

特表平10-509996(JP,A)

特表平07-502728(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 311/,335/,405/,409/,413/,417/

C09K 11/

H05B 33/

REGISTRY/CAPLUS(STN)