

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5590909号  
(P5590909)

(45) 発行日 平成26年9月17日 (2014. 9. 17)

(24) 登録日 平成26年8月8日 (2014. 8. 8)

(51) Int. Cl.

F I

C O 7 D 413/10 (2006. 01)

C O 7 D 413/10

C O 9 K 11/06 (2006. 01)

C O 9 K 11/06 6 9 0

H O 1 L 51/50 (2006. 01)

C O 9 K 11/06 6 5 5

H O 5 B 33/14 B

請求項の数 9 (全 55 頁)

(21) 出願番号 特願2010-28332 (P2010-28332)  
(22) 出願日 平成22年2月11日 (2010. 2. 11)  
(65) 公開番号 特開2010-215613 (P2010-215613A)  
(43) 公開日 平成22年9月30日 (2010. 9. 30)  
審査請求日 平成25年1月10日 (2013. 1. 10)  
(31) 優先権主張番号 特願2009-36626 (P2009-36626)  
(32) 優先日 平成21年2月19日 (2009. 2. 19)  
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 000153878  
株式会社半導体エネルギー研究所  
神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地  
(72) 発明者 野村 洸子  
神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社  
半導体エネルギー研究所内  
(72) 発明者 川上 祥子  
神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社  
半導体エネルギー研究所内  
(72) 発明者 大澤 信晴  
神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社  
半導体エネルギー研究所内  
(72) 発明者 瀬尾 哲史  
神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社  
半導体エネルギー研究所内

最終頁に続く

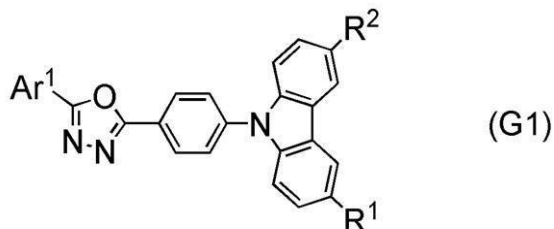
(54) 【発明の名称】 オキサジアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体を用いた発光素子、および発光装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一般式 ( G 1 ) で表されるオキサジアゾール誘導体。

【化 1】

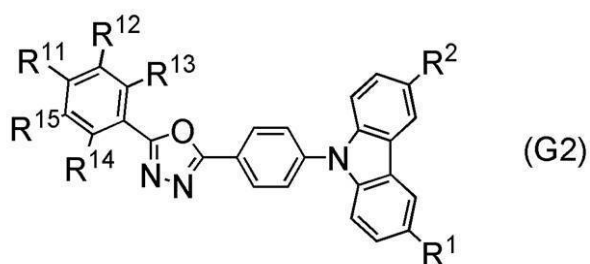


( 式中、 $R^1$ 、 $R^2$  は、水素原子、炭素数が 1 ~ 4 のアルキル基、置換または無置換の炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。ただし、 $R^1$ 、 $R^2$  の少なくとも一方は、置換または無置換の炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。また、 $Ar^1$  は置換または無置換の炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。 )

【請求項 2】

一般式 ( G 2 ) で表されるオキサジアゾール誘導体。

【化 2】



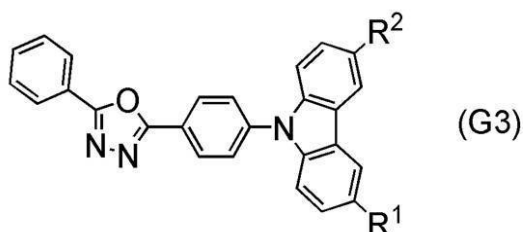
10

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$  は、水素原子、炭素数が 1 ~ 4 のアルキル基、置換または無置換の炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。ただし、 $R^1$ 、 $R^2$  の少なくとも一方は、置換または無置換の炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。また、 $R^{11} \sim R^{15}$  はそれぞれ、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。)

【請求項 3】

一般式 ( G 3 ) で表されるオキサジアゾール誘導体。

【化 3】



20

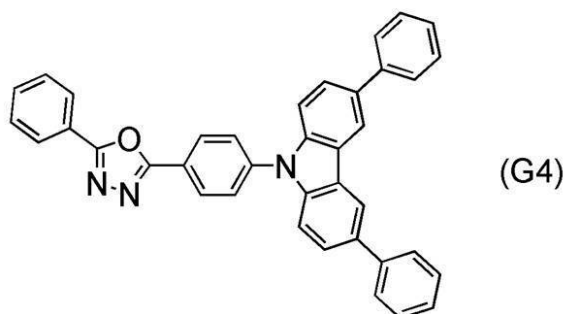
(式中、 $R^1$ 、 $R^2$  は、水素原子、炭素数が 1 ~ 4 のアルキル基、置換または無置換の炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。ただし、 $R^1$ 、 $R^2$  の少なくとも一方は、置換または無置換の炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。)

30

【請求項 4】

構造式 ( G 4 ) で表されるオキサジアゾール誘導体。

【化 4】

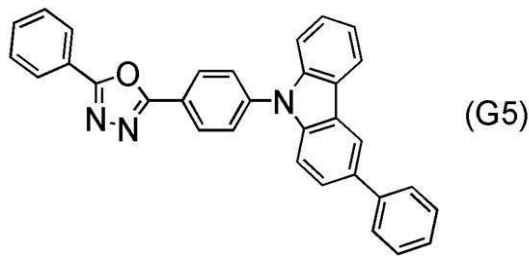


40

【請求項 5】

構造式 ( G 5 ) で表されるオキサジアゾール誘導体。

## 【化 5】



10

## 【請求項 6】

請求項 1 乃至請求項 5 のいずれかーに記載のオキサジアゾール誘導体と発光物質とを含む発光層を備えた発光素子。

## 【請求項 7】

前記発光物質が燐光性化合物である請求項 6 に記載の発光素子。

## 【請求項 8】

請求項 1 乃至請求項 5 のいずれかーに記載のオキサジアゾール誘導体を含む層を発光層に接して備えた発光素子。

## 【請求項 9】

請求項 6 乃至請求項 8 のいずれかーに記載の発光素子を用いた発光装置。

20

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

技術分野は、オキサジアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体を用いた発光素子、および発光装置に関するものである。

## 【背景技術】

## 【0002】

近年、エレクトロルミネッセンス (Electroluminescence) 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性の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、発光性の物質からの発光が得られる。

30

## 【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。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】

また、これらの発光素子は膜状に形成することが可能であるため、大面積の素子を形成することにより、容易に面光源を得ることができる。このような特徴は、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ものであり、利用価値も高い。

40

## 【0005】

エレクトロルミネッセンスを利用した発光素子は、発光性の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される。発光性の物質に有機化合物を用いる場合の発光メカニズムは次の通りである。まず、発光素子に電圧を印加する。これにより、一対の電極から電子および正孔がそれぞれ発光性の有機化合物を含む層に注入され、発光性の有機化合物が励起状態を形成する。そして、励起状態が基底状態に戻る際のキャリア (電子および正孔) の再結合により発光する。

## 【0006】

上述のメカニズムから、このような発光素子は電流励起型の発光素子と呼ばれる。なお、

50

有機化合物が形成する励起状態には、一重項励起状態と三重項励起状態が存在し、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、 $S^* : T^* = 1 : 3$  であると言われている。

【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）は観測されない。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、 $S^* : T^* = 1 : 3$  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）を用いる場合、理論的には 75 ~ 100% という内部量子効率の実現可能である。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（例えば、非特許文献 1 参照）。

【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、他の物質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。この場合、マトリクスとなる物質はホスト材料、燐光性化合物のようにマトリクス中に分散される物質はゲスト材料と呼ばれることがある。

【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。非特許文献 1 でホスト材料として用いられている CBP は、緑色 ~ 赤色の発光を示す燐光性化合物よりも大きな三重項励起エネルギーを有することが知られており、燐光性化合物に対するホスト材料として広く利用されている。

【0011】

しかしながら、CBP はその大きな三重項励起エネルギーと引き替えに、正孔や電子を受け取る能力に乏しいため、駆動電圧が高くなるという問題点があった。このため、大きな三重項励起エネルギーを有すると共に、正孔・電子の両方を受け取りやすく、また輸送できる物質（すなわちバイポーラ性を有する物質）が、燐光性化合物に対するホスト材料として求められている。

【0012】

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と共に、バイポーラ性を有する物質は、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。

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0013】

【非特許文献 1】M. A. バルド、外 4 名、アブライド フィジクス レターズ、Vol. 75、No. 1、4 - 6 (1999)

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0014】

そこで、本明細書等（少なくとも明細書、特許請求の範囲、および図面を含む）において開示する発明の一態様は、励起エネルギーの大きな物質、特に、三重項励起エネルギーの大きな物質として、新規のオキサジアゾール誘導体を提供することを目的の一とする。ま

10

20

30

40

50

たは、パイポーラ性を有する新規のオキサジアゾール誘導体を提供することを目的の一とする。または、発光素子の素子特性を向上させることを目的の一とする。または、消費電力が小さく、寿命の長い発光装置または電子機器を提供することを目的の一とする。

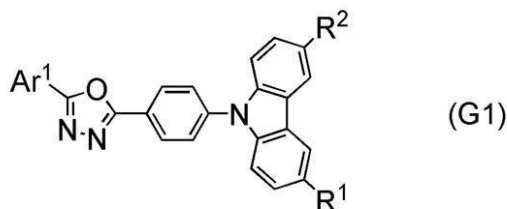
【課題を解決するための手段】

【0015】

開示する発明の一態様は、下記一般式（G1）で表されるオキサジアゾール誘導体である。

【0016】

【化1】



【0017】

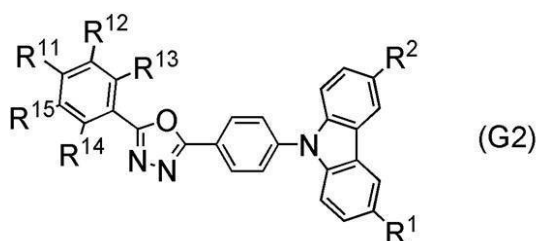
一般式（G1）において、 $R^1$ 、 $R^2$  は、水素原子、炭素数が1～4のアルキル基、置換または無置換の、炭素数が6～10のアリール基を表す。ただし、 $R^1$ 、 $R^2$  の少なくとも一方は、置換または無置換の、環を形成する炭素数が6～10のアリール基を表す。また、 $Ar^1$  は置換または無置換の、環を形成する炭素数が6～10のアリール基を表す。 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $Ar^1$  において、置換基は、炭素数1～4のアルキル基、環を形成する炭素数が6～10のアリール基である。

【0018】

開示する発明の別の一態様は、下記一般式（G2）で表されるオキサジアゾール誘導体である。

【0019】

【化2】



【0020】

一般式（G2）において、 $R^1$ 、 $R^2$  は、水素原子、炭素数が1～4のアルキル基、置換または無置換の、炭素数が6～10のアリール基を表す。ただし、 $R^1$ 、 $R^2$  の少なくとも一方は、置換または無置換の、環を形成する炭素数が6～10のアリール基を表す。 $R^1$ 、 $R^2$  において、置換基は、炭素数1～4のアルキル基、環を形成する炭素数が6～10のアリール基である。また、 $R^{11}$ ～ $R^{15}$  はそれぞれ、水素原子、炭素数1～4のアルキル基、環を形成する炭素数が6～10のアリール基を表す。

【0021】

開示する発明の別の一態様は、下記一般式（G3）で表されるオキサジアゾール誘導体である。

【0022】

10

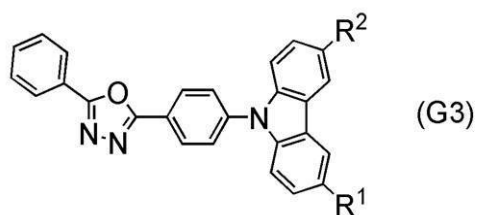
20

30

40

50

## 【化 3】



## 【 0 0 2 3 】

10

一般式 ( G 3 ) において、 $R^1$ 、 $R^2$  は、水素原子、炭素数が 1 ~ 4 のアルキル基、置換または無置換の、炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。ただし、 $R^1$ 、 $R^2$  の少なくとも一方は、置換または無置換の、環を形成する炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。 $R^1$ 、 $R^2$  において、置換基は、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、環を形成する炭素が 6 ~ 10 のアリール基である。

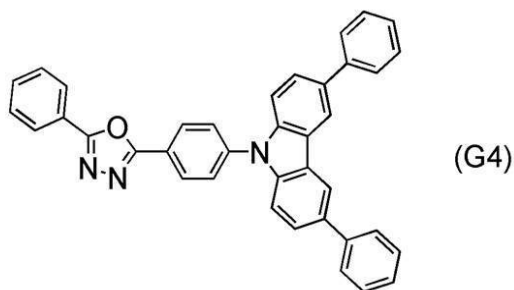
## 【 0 0 2 4 】

開示する発明の別の一態様は、構造式 ( G 4 ) で表されるオキサジアゾール誘導体である。

## 【 0 0 2 5 】

## 【化 4】

20



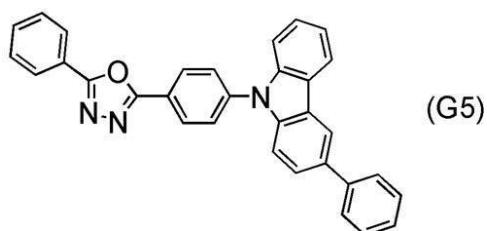
## 【 0 0 2 6 】

30

開示する発明の別の一態様は、構造式 ( G 5 ) で表されるオキサジアゾール誘導体である。

## 【 0 0 2 7 】

## 【化 5】



40

## 【 0 0 2 8 】

上述のオキサジアゾール誘導体は、発光層のホスト材料、ゲスト材料のいずれとしても用いることができる。つまり、開示する発明の別の一態様は、上述のオキサジアゾール誘導体を含む発光層を備えた発光素子である。

## 【 0 0 2 9 】

また、上述のオキサジアゾール誘導体は発光層のホスト材料として好適である。つまり、開示する発明の別の一態様は、上述のオキサジアゾール誘導体と発光物質とを含む発光層を備えた発光素子である。

50

## 【 0 0 3 0 】

また、上述のオキサジアゾール誘導体は大きな三重項励起エネルギーを有するため、燐光性化合物を発光物質として用いた発光層のホスト材料として好適である。つまり、開示する発明の別の一態様は、上述の発光物質が燐光性化合物である発光素子である。

## 【 0 0 3 1 】

また、上述のオキサジアゾール誘導体は大きな励起エネルギーを有するため、上述のオキサジアゾール誘導体を含む層を発光層に接するように設けることが好適である。つまり、開示する発明の別の一態様は、上述のオキサジアゾール誘導体を含む層を発光層に接して備えた発光素子である。このような構成とすることで、発光層で生じた励起子が他の層へ拡散することを防止できる。その結果、発光効率の高い発光素子を得ることができる。

10

## 【 0 0 3 2 】

また、開示する発明の別の一態様は、上記の発光素子を用いて形成されたことを特徴とする発光装置である。また、発光装置を用いて形成されたことを特徴とする電子機器である。

## 【 0 0 3 3 】

なお、本明細書等における発光装置には、画像表示デバイス、発光デバイス、光源（照明装置含む）などが含まれる。また、発光装置にコネクタ、例えばFPC（Flexible printed circuit）、TAB（Tape Automated Bonding）テープ、TCP（Tape Carrier Package）などが取り付けられたモジュール、TABテープやTCPなどの先にプリント配線板が設けられたモジュール、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は、全て発光装置に含まれる。

20

## 【発明の効果】

## 【 0 0 3 4 】

開示する発明の一態様により、三重項励起エネルギーの大きいオキサジアゾール誘導体を提供することができる。または、パイポーラ性を有するオキサジアゾール誘導体を提供することができる。または、発光素子の素子特性を向上することができる。または、消費電力が少なく、寿命の長い発光装置または電子機器を提供することができる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【 0 0 3 5 】

30

【図1】発光素子について説明する図である。

【図2】発光素子について説明する図である。

【図3】発光素子について説明する図である。

【図4】パッシブマトリクス型の発光装置を示す図である。

【図5】パッシブマトリクス型の発光装置を示す図である。

【図6】アクティブマトリクス型の発光装置を示す図である。

【図7】電子機器について説明する図である。

【図8】照明器具について説明する図である。

【図9】発光素子について説明する図である。

【図10】CO11II（略称）の<sup>1</sup>H-NMRチャートである。

40

【図11】CO11II（略称）の紫外・可視吸収スペクトルおよび発光スペクトルである。

【図12】CO11II（略称）の紫外・可視吸収スペクトルおよび発光スペクトルである。

【図13】CO11II（略称）の酸化側のCV測定結果を示す図である。

【図14】CO11II（略称）の還元側のCV測定結果を示す図である。

【図15】CO11III（略称）の<sup>1</sup>H-NMRチャートである。

【図16】CO11III（略称）の紫外・可視吸収スペクトルおよび発光スペクトルである。

【図17】CO11III（略称）の紫外・可視吸収スペクトルおよび発光スペクトルで

50

ある。

【図 18】CO11III (略称) の酸化側の CV 測定結果を示す図である。

【図 19】CO11III (略称) の還元側の CV 測定結果を示す図である。

【図 20】発光素子 0 ~ 発光素子 2 の電流密度 - 輝度特性を示す図である。

【図 21】発光素子 0 ~ 発光素子 2 の電圧 - 輝度特性を示す図である。

【図 22】発光素子 0 ~ 発光素子 2 の輝度 - 電流効率特性を示す図である。

【図 23】発光素子 0 ~ 発光素子 2 の発光スペクトルを示す図である。

【図 24】発光素子 0 ~ 発光素子 2 の時間 - 規格化輝度特性を示す図である。

【図 25】発光素子 3 の電流密度 - 輝度特性を示す図である。

【図 26】発光素子 3 の電圧 - 輝度特性を示す図である。

10

【図 27】発光素子 3 の輝度 - 電流効率特性を示す図である。

【図 28】発光素子 3 の発光スペクトルを示す図である。

【図 29】発光素子 3 の時間 - 規格化輝度特性を示す図である。

【図 30】CO11II の最高被占有軌道 (HOMO) と最低空軌道 (LUMO) を示す図である。

【図 31】CO11III の最高被占有軌道 (HOMO) と最低空軌道 (LUMO) を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0036】

以下、実施の形態について、図面を用いて詳細に説明する。但し、発明は以下に示す実施の形態の記載内容に限定されず、本明細書等において開示する発明の趣旨から逸脱することなく形態および詳細を様々に変更し得ることは当業者にとって自明である。また、異なる実施の形態に係る構成は、適宜組み合わせることで実施することが可能である。なお、以下に説明する発明の構成において、同一部分または同様な機能を有する部分には同一の符号を用い、その繰り返しの説明は省略する。

20

【0037】

(実施の形態 1)

本実施の形態 1 では、開示する発明の一態様であるオキサジアゾール誘導体について説明する。

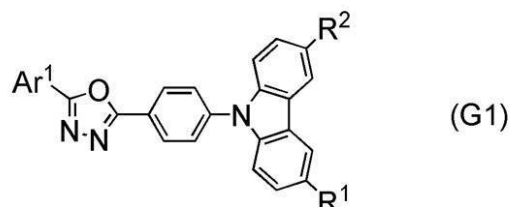
【0038】

30

開示する発明の一態様であるオキサジアゾール誘導体は、一般式 (G1) で表されるオキサジアゾール誘導体である。

【0039】

【化 6】



40

【0040】

一般式 (G1) において、 $R^1$ 、 $R^2$  は、水素原子、炭素数が 1 ~ 4 のアルキル基、置換または無置換の、炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。ただし、 $R^1$ 、 $R^2$  の少なくとも一方は、置換または無置換の、環を形成する炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。また、 $Ar^1$  は置換または無置換の、環を形成する炭素数が 6 ~ 10 のアリール基を表す。 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $Ar^1$  において、置換基は、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、環を形成する炭素数が 6 ~ 10 のアリール基である。

50

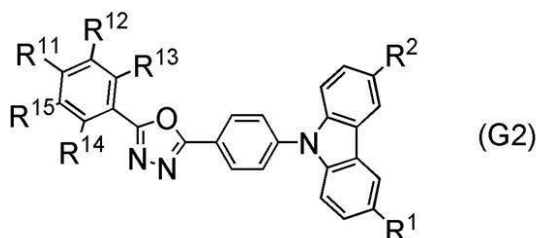


【 0 0 4 1 】

また、開示する発明の別の一態様であるオキサジアゾール誘導体は、一般式（ G 2 ）で表されるオキサジアゾール誘導体である。

【 0 0 4 2 】

【 化 7 】



10

【 0 0 4 3 】

一般式（ G 2 ）において、 $R^1$ 、 $R^2$  は、水素原子、炭素数が 1 ～ 4 のアルキル基、置換または無置換の、炭素数が 6 ～ 10 のアリール基を表す。ただし、 $R^1$ 、 $R^2$  の少なくとも一方は、置換または無置換の、環を形成する炭素数が 6 ～ 10 のアリール基を表す。 $R^1$ 、 $R^2$  において、置換基は、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、環を形成する炭素が 6 ～ 10 のアリール基である。また、 $R^{11} \sim R^{15}$  はそれぞれ、水素原子、炭素数 1 ～ 4 のアル

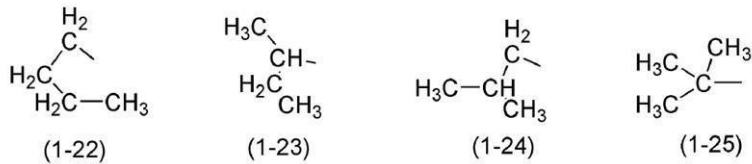
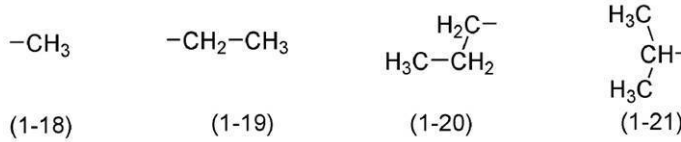
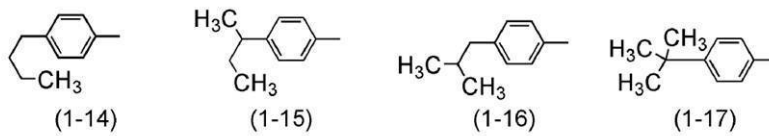
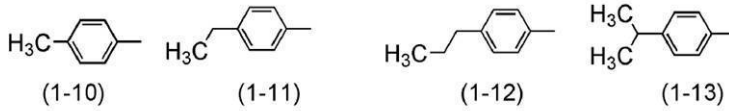
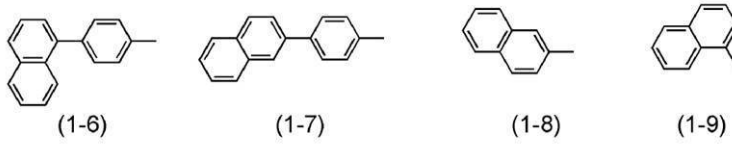
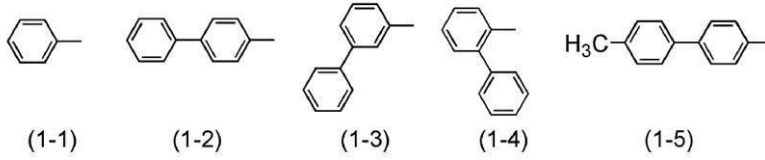
20

【 0 0 4 4 】

なお、一般式（ G 1 ）や一般式（ G 2 ）における  $R^1$ 、 $R^2$  の具体的な構造としては、構造式（ 1 - 1 ）～ 構造式（ 1 - 26 ）に示す置換基が挙げられる。

【 0 0 4 5 】

## 【化 8】



## 【 0 0 4 6 】

また、一般式 ( G 1 ) や一般式 ( G 2 ) における  $A r^1$  の具体的な構造としては、構造式 ( 2 - 1 ) ~ 構造式 ( 2 - 1 7 ) に示す置換基が挙げられる。

## 【 0 0 4 7 】

10

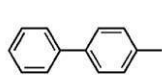
20

30

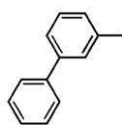
## 【化 9】



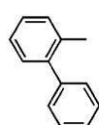
(2-1)



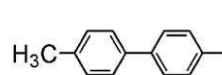
(2-2)



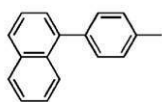
(2-3)



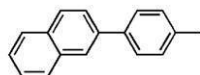
(2-4)



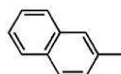
(2-5)



(2-6)



(2-7)

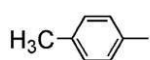


(2-8)

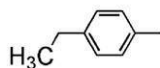


(2-9)

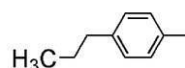
10



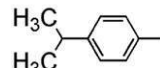
(2-10)



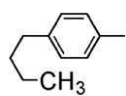
(2-11)



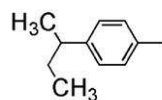
(2-12)



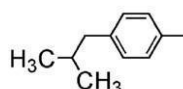
(2-13)



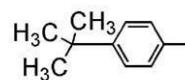
(2-14)



(2-15)



(2-16)



(2-17)

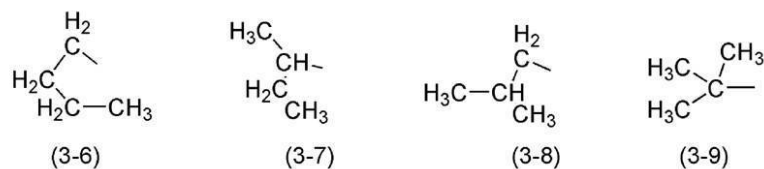
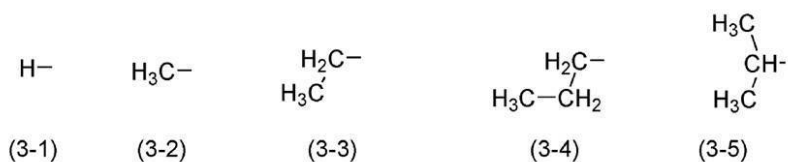
20

## 【 0 0 4 8 】

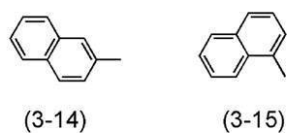
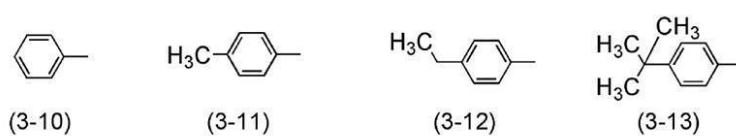
また、一般式 ( G 2 ) における  $R^{11} \sim R^{15}$  の具体的な構造としては、構造式 ( 3 - 1 ) ~ 構造式 ( 3 - 1 5 ) に示す置換基が挙げられる。

## 【 0 0 4 9 】

## 【化 1 0】



10



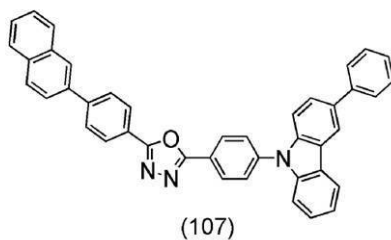
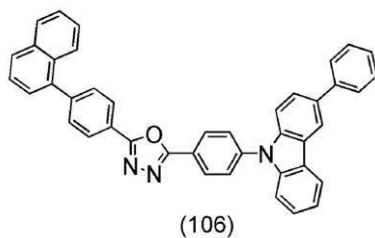
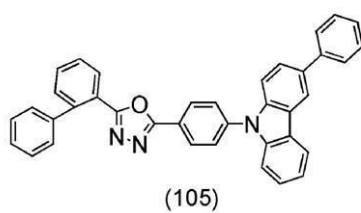
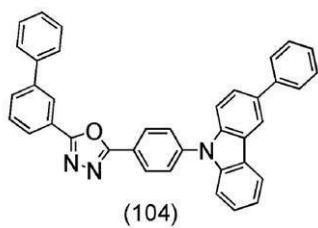
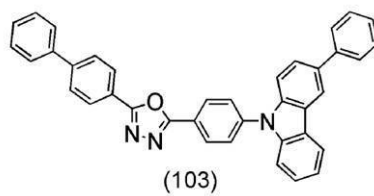
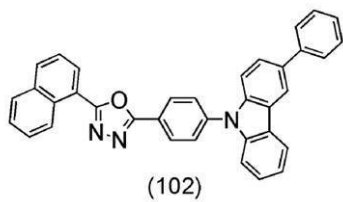
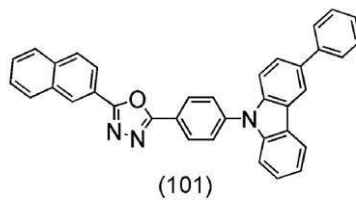
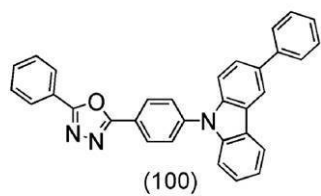
20

## 【 0 0 5 0】

一般式 ( G 1 ) や一般式 ( G 2 ) に示されるオキサジアゾール誘導体の具体例としては、構造式 ( 1 0 0 ) ~ 構造式 ( 2 2 2 ) に示されるものを挙げることができる。但し、開示する発明の一態様はこれらに限定されない。

## 【 0 0 5 1】

## 【化 1 1】



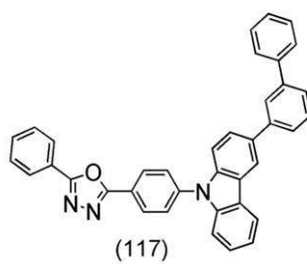
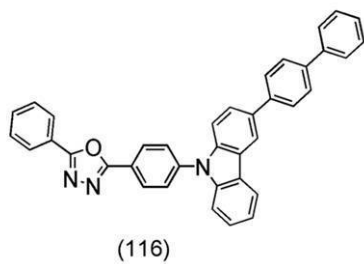
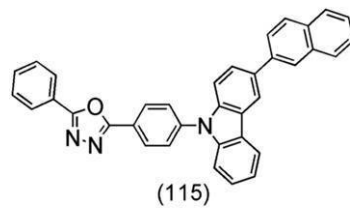
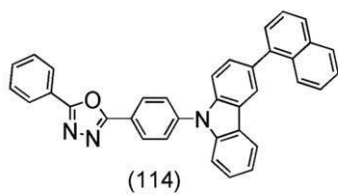
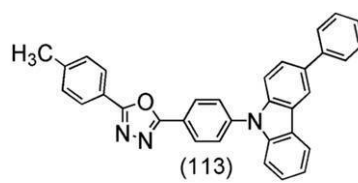
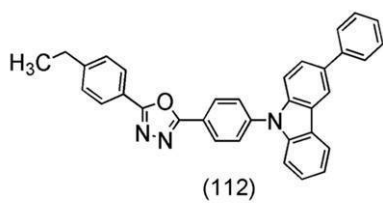
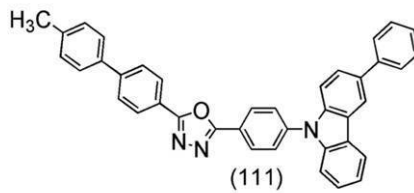
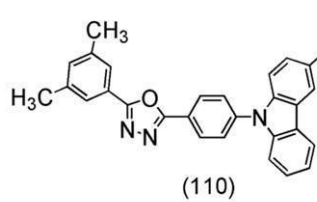
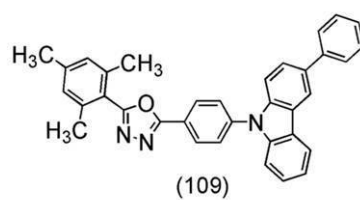
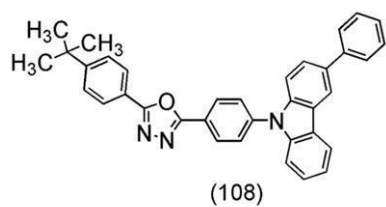
## 【 0 0 5 2 】

10

20

30

## 【化 1 2】



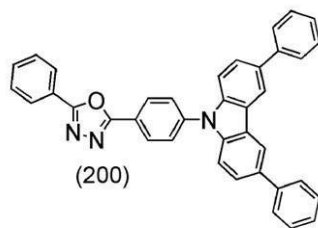
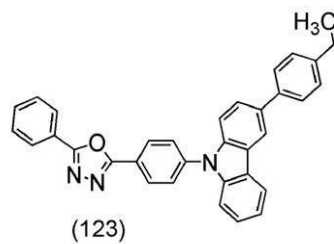
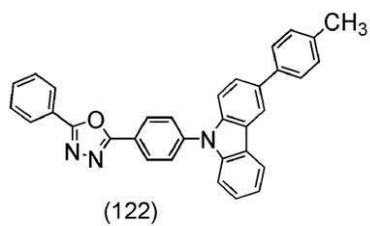
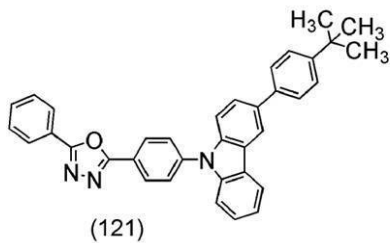
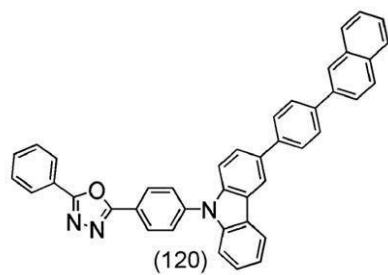
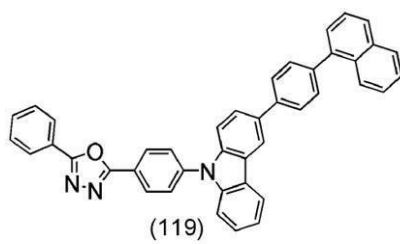
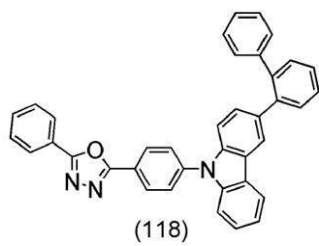
## 【 0 0 5 3 】

10

20

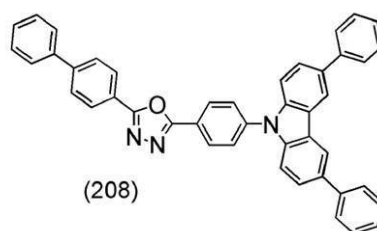
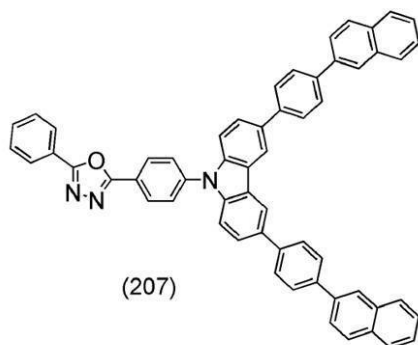
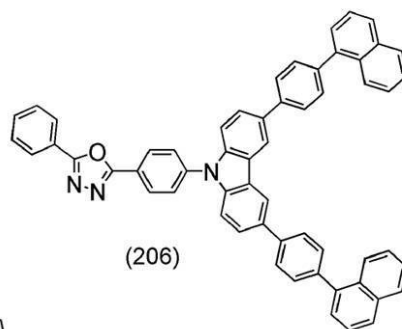
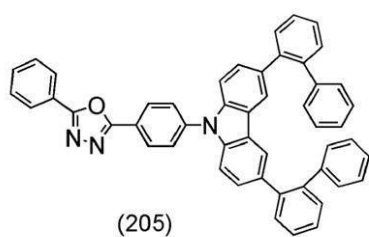
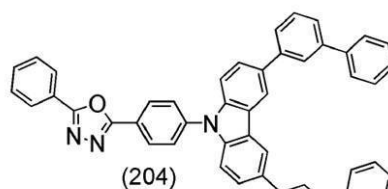
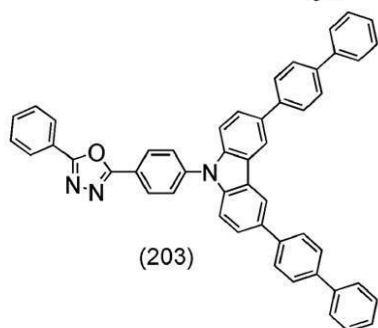
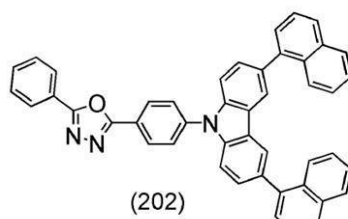
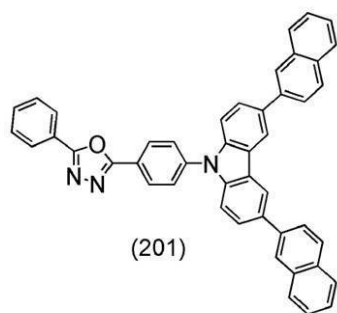
30

【化 1 3】



【 0 0 5 4】

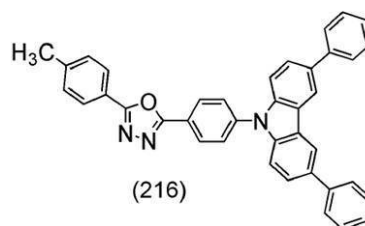
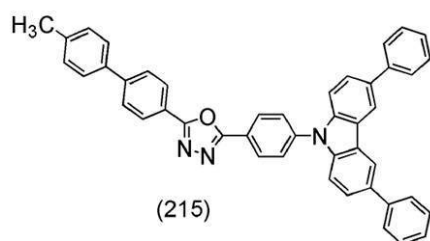
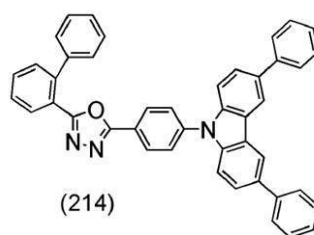
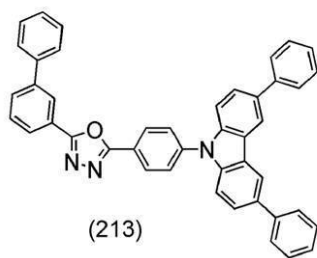
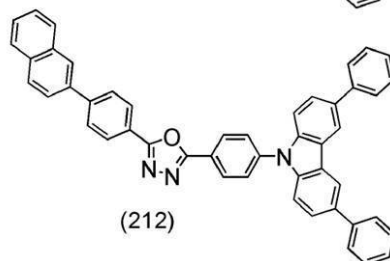
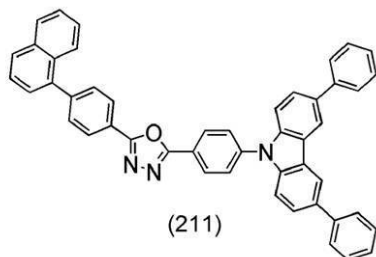
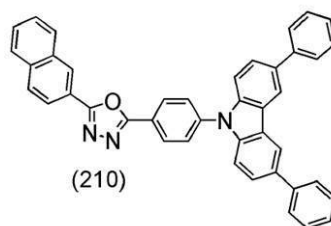
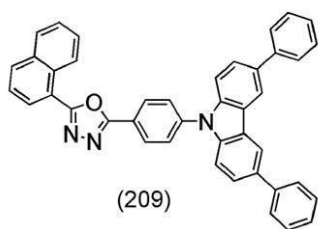
【化 1 4】



【 0 0 5 5 】

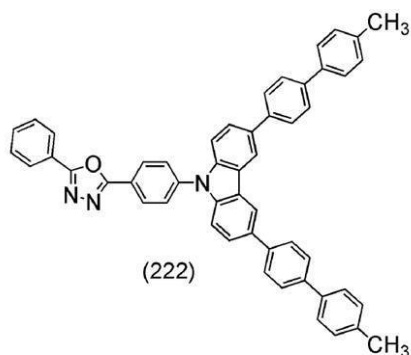
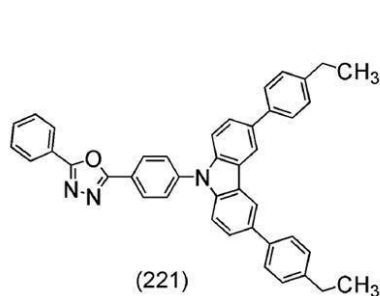
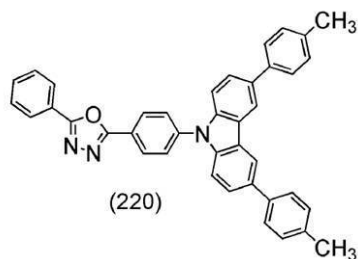
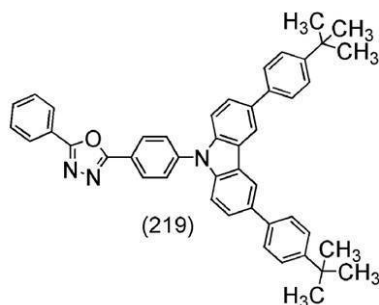
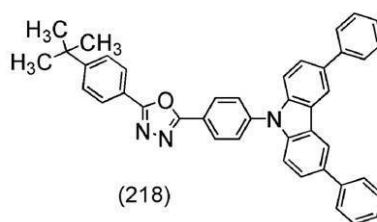
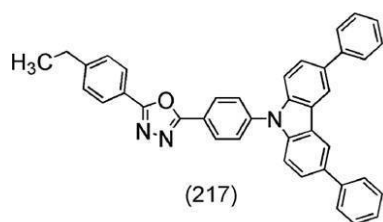


【化 1 5】



【 0 0 5 6 】

## 【化 1 6】

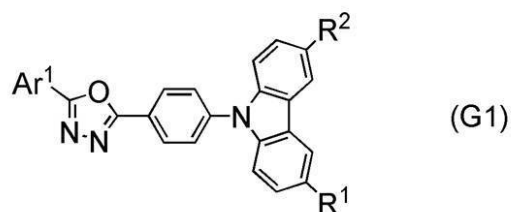


## 【 0 0 5 7】

開示する発明の一態様であるオキサジアゾール誘導体の合成方法としては、種々のものが考えられる。例えば、以下に示す合成反応によって、下記一般式（G1）で表されるオキサジアゾール誘導体を合成することができる。なお、オキサジアゾール誘導体の合成方法は、以下の合成方法に限定されない。

## 【 0 0 5 8】

## 【化 1 7】



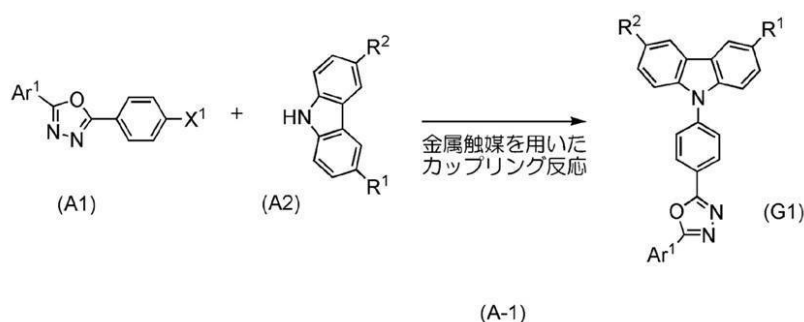
## 【 0 0 5 9】

<一般式（G1）で表されるオキサジアゾール誘導体の合成方法>

一般式（G1）で表されるオキサジアゾール誘導体は、合成スキーム（A-1）のようにして合成することができる。

【 0 0 6 0 】

【 化 1 8 】



10

【 0 0 6 1 】

すなわち、ハロゲン化したオキサジアゾール誘導体 (A1) と、9H-カルバゾール誘導体 (A2) とを、パラジウム触媒を用いたハートウィック・ブッフバルト反応、または、銅や銅化合物を用いたウルマン反応によりカップリングすることで、開示する発明の一態様であるオキサジアゾール誘導体 (一般式 (G1)) を得ることができる。なお、本明細書等においては (G1) を便宜的にオキサジアゾール誘導体と称しているが、カルバゾール誘導体と呼んでも良い。

20

【 0 0 6 2 】

合成スキーム (A-1) において、X<sup>1</sup> はハロゲンを表す。ハロゲンとしては、ヨウ素または臭素が好ましい。合成スキーム (A-1) において、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup> は、水素原子、炭素数が1~4のアルキル基、置換または無置換の、炭素数が6~10のアリール基を表す。ただし、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup> の少なくとも一方は、置換または無置換の、環を形成する炭素数が6~10のアリール基を表す。また、Ar<sup>1</sup> は置換または無置換の、環を形成する炭素数が6~10のアリール基を表す。R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、Ar<sup>1</sup> において、置換基は、炭素数1~4のアルキル基、環を形成する炭素が6~10のアリール基である。

【 0 0 6 3 】

合成スキーム (A-1) において、ハートウィック・ブッフバルト反応を行う場合には、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)、酢酸パラジウム(II)等のパラジウム触媒を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(tert-ブチル)ホスフィンや、トリ(n-ヘキシル)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。ここで、用いることができる塩基としては、ナトリウム tert-ブトキシド等の有機塩基や、炭酸カリウム等の無機塩基等が挙げられる。また、用いることができる溶媒としては、トルエン、キシレン、ベンゼン、テトラヒドロフラン等が挙げられる。

30

【 0 0 6 4 】

合成スキーム (A-1) において、ウルマン反応を行う場合には、ヨウ化銅(I)、酢酸銅(II)等の銅化合物を用いることができる。また、銅化合物の他にも銅を用いることができる。ここで、用いることができる塩基としては、炭酸カリウム等の無機塩基が挙げられる。また、用いることができる溶媒としては、1,3-ジメチル-3,4,5,6-テトラヒドロ-2(1H)ピリミジノン(DMPU)、トルエン、キシレン、ベンゼン等が挙げられる。ウルマン反応では、反応温度を100以上とすることで、短時間かつ高収率に目的物を得ることができるため、沸点の高いDMPU、キシレンなどを用いることが好ましい。また、反応温度は150以上とするとさらに好ましく、この場合には、DMPUなどを用いることができる。

40

【 0 0 6 5 】

以上、反応スキームの一例について説明したが、開示する発明の一態様であるオキサジアゾール誘導体 (G1) は、他のどのような合成方法によって合成されても良い。

50

## 【0066】

(実施の形態2)

本実施の形態では、先の実施の形態で説明したオキサジアゾール誘導体を発光層に用いた発光素子の一例について、図面を参照して説明する。

## 【0067】

図1に、第1の電極101と第2の電極103との間に発光層113を有するEL層102を挟んでなる発光素子の一例を示す。

## 【0068】

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、発光性の有機化合物を励起状態にする。そして、励起状態の有機化合物が基底状態に戻る際に発光する。なお、本実施の形態に示す発光素子において、第1の電極101は陽極として機能し、第2の電極103は陰極として機能する。なお、図1に示す構成において、積層順序を逆にしても良いことは言うまでもない。

## 【0069】

陽極として機能する第1の電極101は、仕事関数の大きい(具体的には4.0eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などの材料を用いて形成することが好ましい。具体的には、例えば、酸化インジウム-酸化スズ(ITO: Indium Tin Oxide)、珪素または酸化珪素を含有した酸化インジウム-酸化スズ、酸化インジウム-酸化亜鉛(IZO: Indium Zinc Oxide)、酸化タングステンおよび酸化亜鉛を含有した酸化インジウム等が挙げられる。その他、金(Au)、白金(Pt)、ニッケル(Ni)、タングステン(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)等を用いても良い。

## 【0070】

ただし、EL層102のうち、第1の電極101に接する層が、有機化合物と電子受容体(アクセプター)との複合材料を用いて形成される場合には、第1の電極101に用いる物質は、仕事関数の大小により制限を受けることはない。例えば、アルミニウム(Al)、銀(Ag)、アルミニウムを含む合金(AlSi)等を用いることもできる。

## 【0071】

なお、第1の電極101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。

## 【0072】

第1の電極101上に形成されるEL層102は、少なくとも発光層113を有しており、また、先の実施の形態において示したオキサジアゾール誘導体を含んで形成される。EL層102の一部には公知の物質を用いることが可能であり、低分子系化合物または高分子系化合物のいずれを用いても良い。なお、EL層102を形成する物質は、無機化合物を一部に含んでいても良い。

## 【0073】

また、EL層102は、発光層113の他、図1に示すように、正孔注入性の高い物質を含む正孔注入層111、正孔輸送性の高い物質を含む正孔輸送層112、電子輸送性の高い物質を含む電子輸送層114、電子注入性の高い物質を含む電子注入層115などを適宜組み合わせることで積層することにより形成される。

## 【0074】

正孔注入層111は、正孔注入性の高い物質を含む層である。正孔注入性の高い物質としては、モリブデン酸化物、チタン酸化物、バナジウム酸化物、レニウム酸化物、ルテニウム酸化物、クロム酸化物、ジルコニウム酸化物、ハフニウム酸化物、タンタル酸化物、銀酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等の金属酸化物を用いることができる。また、フタロシアニン(略称: H<sub>2</sub>Pc)、銅(II)フタロシアニン(略称: CuPc)、バナジルフタロシアニン(略称: VOPc)等のフタロシアニン系の化合物を用いるこ

10

20

30

40

50

とができる。

【0075】

また、低分子の有機化合物である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 - (4 - ジフェニルアミノフェニル) - N - フェニルアミノ]ビフェニル(略称: DPAB)、4, 4' - ビス(N - {4 - [N' - (3 - メチルフェニル) - N' - フェニルアミノ]フェニル} - N - フェニルアミノ)ビフェニル(略称: DNTPD)、1, 3, 5 - トリス[N - (4 - ジフェニルアミノフェニル) - N - フェニルアミノ]ベンゼン(略称: DPA3B)、3 - [N - (9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル) - N - フェニルアミノ] - 9 - フェニルカルバゾール(略称: PCzPCA1)、3, 6 - ビス[N - (9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル) - N - フェニルアミノ] - 9 - フェニルカルバゾール(略称: PCzPCA2)、3 - [N - (1 - ナフチル) - N - (9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル)アミノ] - 9 - フェニルカルバゾール(略称: PCzPCN1)等の芳香族アミン化合物等を用いることができる。

10

【0076】

また、高分子化合物(オリゴマー、デンドリマー、ポリマー等)を用いることもできる。例えば、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ができる。また、ポリ(3, 4 - エチレンジオキシチオフェン)/ポリ(スチレンスルホン酸)(PEDOT/PSS)、ポリアニリン/ポリ(スチレンスルホン酸)(PAni/PSS)等の酸を添加した高分子化合物を用いることができる。

20

【0077】

また、正孔注入層111として、有機化合物と電子受容体(アクセプター)とを混合してなる複合材料を用いてもよい。このような複合材料は、電子受容体によって有機化合物に正孔が発生するため、正孔注入性および正孔輸送性に優れている。この場合、有機化合物としては、発生した正孔の輸送に優れた材料(正孔輸送性の高い物質)を用いることが好ましい。

30

【0078】

上記複合材料に用いる有機化合物は、正孔輸送性の高い有機化合物であることが好ましい。具体的には、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質であることが好ましい。ただし、電子の輸送性よりも正孔の輸送性が高い物質であれば、特に限定して解釈する必要はない。以下では、複合材料に用いることのできる有機化合物の例を具体的に列挙する。

【0079】

複合材料に用いることのできる有機化合物としては、例えば、TDATA、MTDATA、DPAB、DNTPD、DPA3B、PCzPCA1、PCzPCA2、PCzPCN1、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)、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)等の芳香族アミン化合物や、4, 4' - ジ(N - カルバゾリル)ビフェニル(略称: CBP)、1, 3, 5 - トリス[4 - (N - カルバゾリル)フェニル]ベンゼン(略称: TCPB)、9 - [4 - (N - カルバゾリル)]フェニル - 10 - フェニルアントラセン(略称: CzPA)、1, 4 - ビス[4 - (N - カルバゾリル)フェニル] - 2, 3, 5, 6 - テトラフェニルベンゼン等のカルバゾール誘導体を挙げることができる。

40

【0080】

また、2 - tert - ブチル - 9, 10 - ジ(2 - ナフチル)アントラセン(略称: t -

50

BuDNA)、2-tert-ブチル-9,10-ジ(1-ナフチル)アントラセン、9,10-ビス(3,5-ジフェニルフェニル)アントラセン(略称:DPPA)、2-tert-ブチル-9,10-ビス(4-フェニルフェニル)アントラセン(略称:t-BuDBA)、9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:DNA)、9,10-ジフェニルアントラセン(略称:DPAnth)、2-tert-ブチルアントラセン(略称:t-BuAnth)、9,10-ビス(4-メチル-1-ナフチル)アントラセン(略称:DMNA)、9,10-ビス[2-(1-ナフチル)フェニル]-2-tert-ブチル-アントラセン、9,10-ビス[2-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン、2,3,6,7-テトラメチル-9,10-ジ(1-ナフチル)アントラセン等の芳香族炭化水素化合物を用いても良い。

10

**【0081】**

また、2,3,6,7-テトラメチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン、9,9'-ビアントリル、10,10'-ジフェニル-9,9'-ビアントリル、10,10'-ビス(2-フェニルフェニル)-9,9'-ビアントリル、10,10'-ビス[(2,3,4,5,6-ペンタフェニル)フェニル]-9,9'-ビアントリル、アントラセン、テトラセン、ルブレン、ペリレン、2,5,8,11-テトラ(tert-ブチル)ペリレン、ペンタセン、コロネン、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル(略称:DPVBi)、9,10-ビス[4-(2,2-ジフェニルビニル)フェニル]アントラセン(略称:DPVPA)等の芳香族炭化水素化合物を用いても良い。

**【0082】**

20

複合材料に用いることのできる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:F<sub>4</sub>-TCNQ)、クロラニル等の有機化合物や、遷移金属酸化物などがある。周期表における第4族~第8族に属する金属の酸化物を用いても良い。例えば、酸化バナジウム、酸化ニオブ、酸化タンタル、酸化クロム、酸化モリブデン、酸化タングステン、酸化マンガン、酸化レニウムは電子受容性が高く、好適である。中でも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。

**【0083】**

なお、上述したPVK、PVTPA、PTPDMA、Poly-TPD等の高分子化合物と、上述した電子受容体を用いた複合材料を、正孔注入層111に用いてもよい。

30

**【0084】**

正孔輸送層112は、正孔輸送性の高い物質を含む層である。正孔輸送性の高い物質としては、NPB、TPD、4,4'-ビス[N-(9,9-ジメチルフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:DFLDPBi)、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がある。ここに述べた物質は、主に10<sup>-6</sup>cm<sup>2</sup>/Vs以上の正孔移動度を有する物質である。ただし、電子の輸送性よりも正孔の輸送性が高い物質であれば、他の物質を用いても良い。なお、正孔輸送層112は、単層構造であっても良いし、積層構造としても良い。

**【0085】**

40

また、正孔輸送層112には、PVK、PVTPA、PTPDMA、Poly-TPDなどの高分子化合物を用いることもできる。

**【0086】**

発光層113は、発光性の高い物質を含む層である。なお、本実施の形態では、先の実施の形態において示したオキサジアゾール誘導体を発光層に用いる場合について説明する。なお、上述のオキサジアゾール誘導体は、発光性の高い物質(ゲスト材料)を他の物質(ホスト材料)に分散させた構成の発光層において、ホスト材料として用いることが好適であるが、開示する発明の一態様はこれに限定して解釈されない。上述のオキサジアゾール誘導体を、発光層として単独で用いても良い。

**【0087】**

50

先の実施の形態で示したオキサジアゾール誘導体をホスト材料として用いる場合であって、ゲスト材料として蛍光を発する材料を用いる場合には、ゲスト材料として、先の実施の形態に示したオキサジアゾール誘導体よりも最低空軌道準位（LUMO準位）が低く、最高被占有軌道準位（HOMO準位）が高い材料を用いることが好ましい。例えば、青色系の発光材料としては、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)トリフェニルアミン（略称：YGAPA）などが挙げられる。また、緑色系の発光材料としては、N - (9, 10 - ジフェニル - 2 - アントリル) - N, 9 - ジフェニル - 9H - カルバゾール - 3 - アミン（略称：2PCAPA）、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 - 9H - カルバゾール - 3 - アミン（略称：2PCABPhA）、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：2DPAPA）、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：2DPABPhA）、N - [9, 10 - ビス(1, 1' - ビフェニル - 2 - イル)] - N - [4 - (9H - 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：2YGABPhA）、N, N, 9 - トリフェニルアントラセン - 9 - アミン（略称：DPhAPhA）などが挙げられる。また、黄色系の発光材料としては、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：BPT）などが挙げられる。また、赤色系の発光材料としては、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 - mPhTD）、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 - mPhAFD）などが挙げられる。

#### 【0088】

また、先の実施の形態で示したオキサジアゾール誘導体をホスト材料として用いる場合であって、ゲスト材料として燐光を発する材料を用いる場合には、ゲスト材料として、先の実施の形態に示したオキサジアゾール誘導体よりも三重項励起エネルギーが小さい材料を用いることが好ましい。このような材料としては、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：FIraccac）、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>(aac)）、トリス(アセチルアセトナート)(モノフェナントロリン)テルビウム(III)（略称：Tb(aac)<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>(aac)）、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>(aac)）、ビス[2 - (4' - パーフルオロフェニルフェニル)ピリジナト]イリジウム(III)アセチルアセトナート（略称：Ir(p - PF - ph)<sub>2</sub>(aac)）、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>(aac)）、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>(aac)）、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>(aac)）、(アセチルアセトナート)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>(aac)）、(アセチルアセトナート)ビス(2, 3, 5 - トリフェニルピラジナト)イリジウム(III)

)(略称:  $\text{Ir}(\text{tppr})_2(\text{acac})$ )、2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18 - オクタエチル - 21H, 23H - ポルフィリン白金(II)(略称:  $\text{PtOEP}$ )、トリス(1, 3 - ジフェニル - 1, 3 - プロパンジオナト)(モノフェナントロリン)ユーロピウム(III)(略称:  $\text{Eu}(\text{DBM})_3(\text{Phen})$ )、トリス[1 - (2 - テノイル) - 3, 3, 3 - トリフルオロアセトナト](モノフェナントロリン)ユーロピウム(III)(略称:  $\text{Eu}(\text{TTA})_3(\text{Phen})$ )等の有機金属錯体が挙げられる。

#### 【0089】

先の実施の形態で示したオキサジアゾール誘導体は、電子輸送性を有しているため、発光層に用いることにより、電子輸送性の高い発光層とすることができる。このような構成の発光層は、電子トラップ性の高いゲスト材料を用いた場合、極めて高効率の発光を得ること

10

#### 【0090】

また、発光性の物質(ゲスト材料)を分散させるための物質(ホスト材料)は複数種用いることができる。よって、発光層は、先の実施の形態で示したオキサジアゾール誘導体以外に、第2のホスト材料を含んでいても良い。

#### 【0091】

また、上述のオキサジアゾール誘導体は、発光性の物質として、単独で、またはゲスト材料として用いることもできる。

#### 【0092】

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:  $\text{BeBq}_2$ )、 $\text{BAIq}$ 、 $\text{Zn}(\text{BOX})_2$ 、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:  $\text{Zn}(\text{BTZ})_2$ )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: p - EtTAZ)、バソフェナントロリン(略称:  $\text{BPhen}$ )、バソキュプロイン(略称:  $\text{BCP}$ )、4, 4' - ビス(5 - メチルベンゾオキサゾール - 2 - イル)スチルベン(略称:  $\text{BzOs}$ )などの複素芳香族化合物を用いることもできる。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:  $\text{PF-PPy}$ )、ポリ[(9, 9 - ジオクチルフルオレン - 2, 7 - ジイル) - co - (2, 2' - ビピリジン - 6, 6' - ジイル)](略称:  $\text{PF-BPPy}$ )のような高分子化合物を用いても良い。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、正孔の輸送性よりも電子の輸送性が高い物質であれば、他の物質を用いても良い。

20

30

#### 【0093】

また、電子輸送層114は、単層構造であっても良いし、積層構造としても良い。

40

#### 【0094】

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、上述の電子輸送層114を構成する物質を用いても良い。

#### 【0095】

電子注入層115には、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

50



用いてもよい。このような複合材料は、電子供与体によって有機化合物に電子が発生するため、電子注入性および電子輸送性に優れている。この場合、上記の有機化合物は、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、例えば、上述した電子輸送層 114 を構成する物質を用いることができる。電子供与体は、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、イットルビウム等を用いると良い。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、バリウム酸化物等を用いると良い。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、テトラシアフルバレン（略称：TTF）等の有機化合物を用いることもできる。

10

#### 【0096】

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 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。

#### 【0097】

陰極として機能する第 2 の電極 103 は、仕事関数の小さい（好ましくは 3.8 eV 以下）金属、合金、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などの材料を用いて形成することが好ましい。具体的には、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、マグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）等のアルカリ土類金属、またはこれらを含む合金（MgAg、AlLi）、ユーロピウム（Eu）、イットルビウム（Yb）等の希土類金属、またはこれらを含む合金の他、Al や銀などを用いることができる。

20

#### 【0098】

ただし、EL 層 102 のうち、第 2 の電極 103 に接する層が、上述の有機化合物と電子供与体（ドナー）との複合材料を用いて形成される場合には、仕事関数の大小により制限を受けることはない。例えば、Al、Ag、ITO、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム - 酸化スズ等、様々な導電性材料を用いることができる。

#### 【0099】

なお、第 2 の電極 103 を形成する場合には、真空蒸着法やスパッタリング法を用いることができる。また、銀ペーストなどを用いる場合には、塗布法やインクジェット法などを用いても良い。

30

#### 【0100】

上述の発光素子は、第 1 の電極 101 と第 2 の電極 103 との電位差により生じた電子と正孔が、EL 層 102 において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 または第 2 の電極 103 のいずれか一方または両方を介して外部に取り出される。このため、第 1 の電極 101 または第 2 の電極 103 のいずれか一方、または両方が透光性を有している。

#### 【0101】

なお、本実施の形態で示した発光素子を用いて、パッシブマトリクス型の発光装置や、薄膜トランジスタ（TFT）によって発光素子の駆動が制御されるアクティブマトリクス型の発光装置を作製することができる。

40

#### 【0102】

なお、アクティブマトリクス型の発光装置を作製する場合において、その TFT の構造は特に限定されない。また、n 型または p 型のいずれの TFT を用いても良い。さらに、TFT に用いられる半導体材料についても特に限定されない。例えば、シリコン系の半導体材料（非晶質、結晶性、単結晶いずれも含む）、ゲルマニウム系の半導体材料、カルコゲナイド系の半導体材料、その他の各種半導体材料を用いることができる。もちろん、酸化物半導体材料を用いても良い。

#### 【0103】

本実施の形態では、上述のオキサジアゾール誘導体を用いて発光層 113 を形成している

50

。これにより、電力効率が高く、寿命の長い発光素子を提供することができる。

#### 【0104】

本実施の形態は、先の実施の形態に示す構成と適宜組み合わせ用いることができる。

#### 【0105】

(実施の形態3)

開示する発明の一態様である発光素子は、複数の発光層を有するものであってもよい。複数の発光層のそれぞれから発光させることで、混合された光を得ることができる。したがって、例えば、白色光を得ることができる。本実施の形態では、複数の発光層を有する発光素子の態様について、図面を参照して説明する。

#### 【0106】

図2において、第1の電極201と第2の電極203との間には、第1の発光層213と第2の発光層215を有するEL層202が設けられており、第1の発光層213における発光と第2の発光層215における発光が混合された発光を得ることができる。第1の発光層213と第2の発光層215との間には、分離層214を有することが好ましい。

#### 【0107】

第1の電極201の電位が第2の電極203の電位よりも高くなるように電圧を印加すると、第1の電極201と第2の電極203との間に電流が流れ、第1の発光層213及び第2の発光層215及び分離層214に正孔や電子が流れ込む。これにより、第1の発光層213に含まれる第1の発光物質と第2の発光層215に含まれる第2の発光物質が励起状態となる。そして、発光物質が励起状態から基底状態に戻る際に発光する。

#### 【0108】

第1の発光層213には、ペリレン、2,5,8,11-テトラ(tert-ブチル)ペリレン(略称:TBP)、DPVBi、4,4'-ビス[2-(N-エチルカルバゾール-3-イル)ピニル]ピフェニル(略称:BCzVBi)、BAIq、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)ガリウムクロリド(Gamq<sub>2</sub>Cl)などの蛍光性化合物や、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))、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)ピコリナート(略称:FIrpic)、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)テトラ(1-ピラゾリル)ボラート(略称:FIr6)などの燐光性化合物に代表される第1の発光物質が含まれており、450~510nmに発光スペクトルのピークを有する発光(すなわち、青色~青緑色)が得られる。

#### 【0109】

第1の発光物質を蛍光性化合物とする場合、第1の発光層213は、第1の発光物質よりも大きい一重項励起エネルギーを有する物質を第1のホストとして用い、第1の発光物質をゲストとして分散した層とすることが好ましい。また、第1の発光物質を燐光性化合物とする場合、第1の発光物質よりも大きい三重項励起エネルギーを有する物質を第1のホストとして用い、第1の発光物質をゲストとして分散した層とすることが好ましい。第1のホストとしては、先に述べたNPB、CBP、TCTA等の他、DNA、t-BuDNA等を用いることができる。なお、一重項励起エネルギーとは、基底状態と一重項励起状態とのエネルギー差をいう。また、三重項励起エネルギーとは、基底状態と三重項励起状態とのエネルギー差をいう。

#### 【0110】

一方、第2の発光層215は、先の実施の形態で説明したオキサジアゾール誘導体を含んでいる。第2の発光層215は、先の実施の形態で説明した発光層113と同様の構成とすればよい。

#### 【0111】

また、分離層214は、例えば、上述のTPAQn、NPB、CBP、TCTA、Znp

10

20

30

40

50

p<sub>2</sub>、ZnBOX等を用いて形成することができる。このような分離層214を設けることで、第1の発光層213と第2の発光層215のいずれか一方のみの発光強度が強くなってしまうという不具合を防ぐことができる。ただし、分離層214は必須の構成ではない。第1の発光層213の発光強度と第2の発光層215の発光強度との割合の調節が必要な場合などに分離層214を設ければよい。また、開示する発明の一態様であるオキサジアゾール誘導体を分離層214に用いても良い。

#### 【0112】

なお、本実施の形態では、第2の発光層215に先の実施の形態で説明したオキサジアゾール誘導体を用い、第1の発光層213に他の発光物質を適用したが、第1の発光層213に先の実施の形態で説明したオキサジアゾール誘導体を用い、第2の発光層215に他の物質を適用してもよい。

10

#### 【0113】

また、本実施の形態では、2つの発光層が設けられた発光素子について記載しているが、発光層の数は2つに限定されるものではなく、3つ以上であってもよい。

#### 【0114】

なお、第1の電極201は、先の実施の形態で述べた第1の電極101と同様の構成とすればよい。また、第2の電極203も、先の実施の形態で述べた第2の電極103と同様の構成とすればよい。

#### 【0115】

また、本実施の形態では、正孔注入層211、正孔輸送層212、電子輸送層216、電子注入層217を設ける例について示しているが、これらの層に関しても、先の実施の形態で述べた構成を適用することができる。ただし、これらの層は必須の構成ではない。素子の特性に応じてこれらの層を適宜設ければよい。

20

#### 【0116】

本実施の形態に示す構成は、先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。

#### 【0117】

##### (実施の形態4)

本実施の形態では、EL層を複数有する発光素子(以下、積層型素子という)について、図面を参照して説明する。

30

#### 【0118】

図3に、第1の電極301と第2の電極304との間に、複数のEL層(第1のEL層302、第2のEL層303)を有する積層型の発光素子を示す。なお、本実施の形態では、EL層を2層有する場合について示すが、3層以上としても良い。

#### 【0119】

本実施の形態において、第1の電極301は陽極として機能し、第2の電極304は陰極として機能する。なお、第1の電極301および第2の電極304は、先の実施の形態の電極と同様の構成とすることができる。また、複数のEL層(第1のEL層302、第2のEL層303)は、先の実施の形態で示したEL層と同様の構成としても良いが、いずれかが異なる構成であっても良い。すなわち、第1のEL層302と第2のEL層303は、同じ構成であっても異なる構成であってもよい。

40

#### 【0120】

また、複数のEL層(第1のEL層302、第2のEL層303)の間には、電荷発生層305が設けられている。電荷発生層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305から第1のEL層302に電子が注入され、第2のEL層303に正孔が注入される。

#### 【0121】

なお、電荷発生層305は、光の取り出し効率の点から、透光性を有することが好ましい

50

。また、電荷発生層 305 の導電率は、第 1 の電極 301 や第 2 の電極 304 の導電率より低くとも構わない。

【0122】

電荷発生層 305 は、正孔輸送性の高い有機化合物と電子受容体（アクセプター）とを含む構成であっても良いし、電子輸送性の高い有機化合物と電子供与体（ドナー）とを含む構成であっても良い。また、これらの両方が積層された構成であっても良い。

【0123】

正孔輸送性の高い有機化合物や電子受容体の詳細については、先の実施の形態の記載を参照することができる。また、同様に、電子輸送性の高い有機化合物や電子供与体の詳細については、先の実施の形態の記載を参照することができる。

10

【0124】

上述の材料を用いて電荷発生層 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。

【0125】

本実施の形態に係る発光素子のように、複数の EL 層を電荷発生層で仕切って配置することで、電流密度を低く保ったまま、高輝度化を実現することができる。このため、高輝度かつ長寿命な発光素子を実現できる。

【0126】

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の発光色を制御することができる。例えば、2 層の 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、補色の関係にある光を混合すると、白色光を得ることができる。これは、3 層以上の EL 層を有する発光素子の場合でも同様である。

20

【0127】

なお、本実施の形態に示す構成は、先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。

【0128】

（実施の形態 5）

本実施の形態では、開示する発明の一態様として、発光素子を用いたパッシブマトリクス型の発光装置、およびアクティブマトリクス型の発光装置について説明する。

30

【0129】

図 4 および図 5 にパッシブマトリクス型の発光装置の例を示す。

【0130】

パッシブマトリクス型（単純マトリクス型ともいう）の発光装置は、ストライプ状（帯状）の複数の陽極と、ストライプ状の複数の陰極とが互いに直交するように設けられ、その交差部に発光層が形成された構成を有している。このため、選択された（電圧が印加された）陽極と選択された陰極との交点にあたる発光層（以下、画素と呼ぶ）が点灯することになる。

【0131】

図 4（A）～図 4（C）は、封止前における画素部の上面を示す図であり、図 4（D）は、図 4（A）～図 4（C）中の鎖線 A - A' における断面を示す図である。

40

【0132】

基板 401 上には、下地絶縁層として絶縁層 402 が形成されている。なお、下地絶縁層は必須の構成ではないから、必要に応じて形成すればよい。絶縁層 402 上には、第 1 の電極 403 が等間隔に複数配置されている（図 4（A）参照）。

【0133】

また、第 1 の電極 403 上には、各画素に対応する領域に開口部を有する隔壁 404 が設けられている。開口部を有する隔壁 404 は、有機材料（ポリイミド、アクリル、ポリアミド、ポリイミドアミド、レジストまたはベンゾシクロブテン）や無機材料（アルキル基

50

を含むSiO<sub>x</sub>など)などで構成されている。なお、各画素に対応する開口部405が発光領域となる(図4(B)参照)。

【0134】

隔壁404上には、第1の電極403と交差する複数の隔壁406が設けられている(図4(C)参照)。複数の隔壁406は、それぞれ逆テーパー状になっており、互いに平行に配置される。

【0135】

第1の電極403上の、隔壁406が形成されていない領域には、EL層407と、第2の電極408とが順に設けられている(図4(D)参照)。ここで、EL層407と、第2の電極408とは複数の分離され、それぞれ電氣的に独立したものになっている。この  
10  
のような構造のEL層407および第2の電極408は、隔壁406の高さを、EL層407の膜厚と第2の電極408の膜厚の合計より大きくすることで形成することができる。

【0136】

第2の電極408は、第1の電極403と交差する方向に伸長している。なお、隔壁406上にもEL層407と同一の材料層および第2の電極408と同一の材料層が形成されるが、これらと、EL層407および第2の電極408とは分断されている。

【0137】

なお、本実施の形態における第1の電極403および第2の電極408は、いずれが陽極であり、いずれが陰極であるかを問わない。電極の極性に応じて、EL層407を構成する積層構造を適宜調整すればよい。  
20

【0138】

また、基板401を封止し、発光素子が密閉された空間に配置されるようにしても良い。封止は、シール材などの接着剤を用いて、基板401と、封止缶や封止材とを貼り合わせることで行われる。このような封止によって、発光素子の劣化を抑制することができる。なお、密閉された空間には、充填材や、乾燥した不活性ガス、乾燥材(乾燥剤)などを封入してもよい。乾燥材を封入する場合には、微量な水分が除去されるため、水分による発光素子の劣化が抑制される。なお、乾燥材としては、化学吸着によって水分を吸収する物質を用いることが可能である。具体的には、例えば、酸化カルシウムや酸化バリウムなど、アルカリ土類金属の酸化物を用いることができる。その他、ゼオライトやシリカゲル等の物理吸着によって水分を吸着する物質を用いてもよい。  
30

【0139】

次に、図4(A)~図4(D)に示すパッシブマトリクス型の発光装置に、FPCなどを実装した場合の構成を図5に示す。

【0140】

図5の基板501上に形成された画素部においては、走査線群とデータ線群が互いに直交するように交差している。なお、図4における第1の電極403は、図5における走査線503に相当し、図4における第2の電極408は、図5におけるデータ線508に相当し、図4における隔壁406は、図5における隔壁506に相当する。データ線508と走査線503の間には、EL層が形成されており、領域505が1画素となる。

【0141】

なお、走査線503は、その端部で接続配線509と電氣的に接続され、接続配線509は、入力端子510を介してFPC511bに接続される。また、データ線508は、入力端子512を介してFPC511aに接続される。  
40

【0142】

光の取り出し面などには、偏光板、円偏光板(楕円偏光板を含む)、位相差板( / 4板、 / 2板)、カラーフィルタ、反射防止膜などの光学フィルムを設けても良い。また、光の取り出し面や各種フィルムの表面に処理を施しても良い。例えば、表面に微細な凹凸を形成することで、反射光を散乱させて映り込みを低減することが可能である。

【0143】

なお、図5では、駆動回路を有するICチップを基板上に設けない例を示したが、基板上  
50

にＩＣチップを実装させてもよい。ＩＣチップの実装方法としては、ＣＯＧ方式やワイヤボンディング方式、ＴＣＰなどを用いることができる。

【０１４４】

図６に、アクティブマトリクス型の発光装置の例を示す。

【０１４５】

図６（Ａ）は発光装置の上面を示す図であり、図６（Ｂ）は、図６（Ａ）中の鎖線Ａ－Ａ'における断面を示す図である。

【０１４６】

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６０１上に設けられた画素部６０２と、駆動回路部６０３（ソース側駆動回路）と、駆動回路部６０４（ゲート側駆動回路）とを有する。画素部６０２、駆動回路部６０３、および駆動回路部６０４は、シール材６０５によって、素子基板６０１と封止基板６０６との間に封止されている（図６（Ａ）参照）。

10

【０１４７】

また、素子基板６０１上には、外部入力端子を接続するための引き回し配線６０７が設けられている。なお、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）を設ける例を示している。図６においては、ＦＰＣ６０８のみを示しているが、ＦＰＣ６０８にはプリント配線基板（ＰＷＢ）が取り付けられていても良い。本明細書等における発光装置は、発光装置本体のみに限らず、ＦＰＣやＰＷＢなどが取り付けられた状態をも含む。

20

【０１４８】

駆動回路部６０３にはｎチャネル型ＴＦＴ６０９とｐチャネル型ＴＦＴ６１０とを組み合わせたＣＭＯＳ回路が形成されている（図６（Ｂ）参照）。もちろん、回路構成はこれに限定されず、ＣＭＯＳ回路、ＰＭＯＳ回路、ＮＭＯＳ回路など、各種回路を適用することができる。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成した駆動回路一体型を示しているが、これに限定して解釈する必要は無い。外部に駆動回路を形成することもできる。なお、図６（Ｂ）では、ソース側駆動回路である駆動回路部６０３と、画素部６０２のみを例示している。

【０１４９】

画素部６０２は、スイッチング用ＴＦＴ６１１と、電流制御用ＴＦＴ６１２と、電流制御用ＴＦＴ６１２の電極（ソース電極またはドレイン電極）に電氣的に接続された陽極６１３とを含む複数の画素により形成される。なお、陽極６１３の端部を覆うように絶縁物６１４が形成されている。なお、絶縁物６１４としては、光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型の材料、または光によってエッチャントに溶解性となるポジ型の材料のいずれを使用しても良い。また、有機化合物に限らず、酸化シリコンや酸化窒化シリコンなどの無機化合物を用いることもできる。

30

【０１５０】

絶縁物６１４の上端部または下端部は、所定の曲率半径を有する曲面形状を有していることが好ましい。曲面形状を有することにより、絶縁物６１４の上方に形成される膜の被覆性を向上させることができる。例えば、絶縁物６１４の材料としてポジ型の感光性アクリル樹脂を用いる場合には、絶縁物６１４の上端部を、 $0.2\mu\text{m} \sim 3\mu\text{m}$ の曲率半径を有する曲面形状とすることが好ましい。

40

【０１５１】

陽極６１３上には、ＥＬ層６１５および陰極６１６が積層形成されている。ここで、陽極６１３をＩＴＯ膜とし、陽極６１３と接続する電流制御用ＴＦＴ６１２の配線として窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜の積層膜、または、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜の積層膜を適用すると、ＩＴＯ膜とのオーミックコンタクトが可能であり、配線としての抵抗も低く抑えることができる。なお、ここでは図示しないが、陰極６１６は外部入力端子であるＦＰＣ６０８に電氣的に接続されている。

【０１５２】

50

なお、EL層615には、少なくとも発光層が設けられている。また、発光層の他に、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層などを設けてもよい。陽極613、EL層615および陰極616の積層構造で、発光素子617が形成されている。

#### 【0153】

また、図6(B)に示す断面では、一つの発光素子617を示しているが、画素部602においては、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。なお、画素部602に3種類(R、G、B)の発光が得られる発光素子を選択的に設けることで、フルカラー表示が可能となる。カラーフィルタと組み合わせることでフルカラー表示を可能にしても良い。

#### 【0154】

発光素子617は、素子基板601、封止基板606、およびシール材605で囲まれた空間618に設けられている。なお、空間618には、不活性気体(窒素やアルゴン等)が充填される構成の他、シール材605などの他の材料が充填される構成を含む。

#### 【0155】

シール材605にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。素子基板601や封止基板606に用いる材料としては、ガラス基板や石英基板の他、FRP(Fiber glass - Reinforced Plastics)、PVF(ポリビニルフロライド)、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板などを用いることができる。

#### 【0156】

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

#### 【0157】

##### (実施の形態6)

本実施の形態では、本発明を適用した一態様である発光装置を用いて完成させた様々な電子機器および照明器具の一例について、図7、図8を用いて説明する。

#### 【0158】

発光装置を適用した電子機器としては、例えば、テレビジョン装置(テレビ、また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を挙げることができる。これらの電子機器および照明器具の具体例を図7に示す。

#### 【0159】

図7(A)は、テレビジョン装置7100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。

#### 【0160】

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。

#### 【0161】

なお、テレビジョン装置7100は、受信機やモデムなどを備えた構成とする。受信機により一般のテレビ放送の受信を行うことができ、さらにモデムを介して有線また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)または双方向(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。

#### 【0162】

図7(B)はコンピュータの一例を示しており、当該コンピュータは、本体7201、筐

10

20

30

40

50

体 7 2 0 2、表示部 7 2 0 3、キーボード 7 2 0 4、外部接続ポート 7 2 0 5、ポインティングデバイス 7 2 0 6 等を含む。なお、コンピュータは、発光装置をその表示部 7 2 0 3 に用いることにより作製される。

【 0 1 6 3 】

図 7 ( C ) は携帯型遊技機の一例を示している。当該携帯型遊技機は、筐体 7 3 0 1 と筐体 7 3 0 2 の 2 つの筐体で構成されており、連結部 7 3 0 3 により、開閉可能に連結されている。筐体 7 3 0 1 には表示部 7 3 0 4 が組み込まれ、筐体 7 3 0 2 には表示部 7 3 0 5 が組み込まれている。また、図 7 ( C ) に示す携帯型遊技機は、スピーカ部 7 3 0 6、記録媒体挿入部 7 3 0 7、LED ランプ 7 3 0 8、入力手段 ( 操作キー 7 3 0 9、接続端子 7 3 1 0、センサ 7 3 1 1 ( 力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、  
10 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、においまたは赤外線を測定する機能を含むもの )、マイクロフォン 7 3 1 2 ) 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 7 3 0 4 および表示部 7 3 0 5 の両方、または一方に発光装置を用いていればよい。図 7 ( C ) に示す携帯型遊技機は、記録媒体に記録されているプログラムまた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 7 ( 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、その他の様々な機能を有することができる。

【 0 1 6 4 】

図 7 ( D ) は、携帯電話機の一例を示している。携帯電話機 7 4 0 0 は、筐体 7 4 0 1 に組み込まれた表示部 7 4 0 2 の他、操作ボタン 7 4 0 3、外部接続ポート 7 4 0 4、スピーカ 7 4 0 5、マイク 7 4 0 6 などを備えている。なお、携帯電話機 7 4 0 0 は、発光装置を表示部 7 4 0 2 に用いている。

【 0 1 6 5 】

図 7 ( D ) に示す携帯電話機 7 4 0 0 は、表示部 7 4 0 2 を指などで触れることで、情報を入力することができる。また、電話をかける、メールを作成する、などの操作は、表示部 7 4 0 2 を指などで触れることにより行うことができる。

【 0 1 6 6 】

表示部 7 4 0 2 の表示画面 ( 表示画像 ) には主として 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る。第 2 は、文字等の情報の入力を主とする入力モード  
30 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 1 6 7 】

例えば、電話を掛ける、メールを作成する、等の場合には、表示部 7 4 0 2 を文字の入力を主とする文字入力モード ( 第 2 のモード ) とし、文字の入力操作を行えばよい。この場合、表示部 7 4 0 2 には、キーボードまたは番号ボタンを表示させることが好ましい。

【 0 1 6 8 】

また、携帯電話機 7 4 0 0 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 7 4 0 0 の向きを判断して、表示部 7 4 0 2 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。  
40

【 0 1 6 9 】

また、画面モードの切り替えは、表示部 7 4 0 2 を触れること、または筐体 7 4 0 1 の操作ボタン 7 4 0 3 の操作などにより行われる。また、表示部 7 4 0 2 に表示される画像の種類によって切り替えを行うようにしても良い。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 ( 第 1 のモード )、テキストデータであれば入力モード ( 第 2 のモード ) に切り替える。

【 0 1 7 0 】

また、表示部 7 4 0 2 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 ( 第 1 のモード ) から表示モード ( 第 2 のモード ) に切り替えるなどの制御を行っても良い。  
50



## 【 0 1 7 1 】

表示部 7 4 0 2 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 7 4 0 2 に掌や指を触れて、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また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 1 7 2 】

図 7 ( E ) は卓上照明器具であり、照明部 7 5 0 1、傘 7 5 0 2、可変アーム 7 5 0 3、支柱 7 5 0 4、台 7 5 0 5、電源 7 5 0 6を含む。上述の卓上照明器具は、発光装置を照明部 7 5 0 1 に用いることにより作製される。なお、照明器具には天井固定型の照明器具または壁掛け型の照明器具なども含まれる。

10

## 【 0 1 7 3 】

図 8 は、発光装置を、室内の照明装置 8 0 1 として用いた例である。発光装置は大面積化が可能であるため、大型の照明装置として用いることができる。その他、ロール型の照明装置 8 0 2 として用いても良い。また、室内の照明装置 8 0 1 を備えた部屋で、図 7 ( E ) で説明した卓上照明器具 8 0 3 を併用してもよい。

## 【 0 1 7 4 】

先の実施の形態において説明した発光装置などを適用することで、上述のような電子機器、照明器具などを提供することができる。このように、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。

## 【 0 1 7 5 】

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

20

## 【実施例 1】

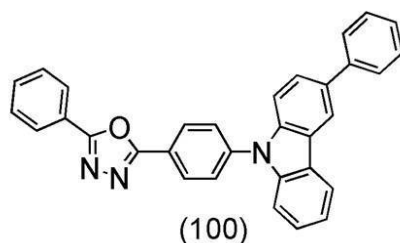
## 【 0 1 7 6 】

本実施例では、構造式 ( 1 0 0 ) で表されるオキサジアゾール誘導体 ( またはカルバゾール誘導体 )、3 - フェニル - 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 I I ) の合成方法について具体的に説明する。

## 【 0 1 7 7 】

## 【化 1 9】

30



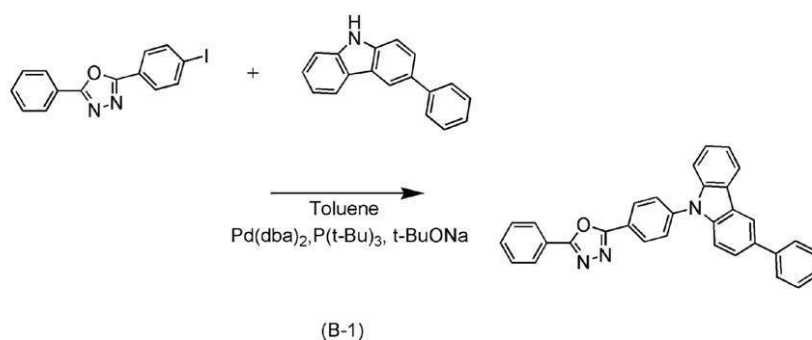
## 【 0 1 7 8 】

3 - フェニル - 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 - カルバゾールの合成スキームを ( B - 1 ) に示す。

40

## 【 0 1 7 9 】

## 【化 20】



10

## 【0180】

2 - (4 - ヨードフェニル) - 5 - フェニル - 1, 3, 4 - オキサジアゾール 2.3 g (6.6 mmol)、3 - フェニル - 9H - カルバゾール 1.6 g (6.6 mmol)、ナトリウム *tert* - ブトキシド 1.4 g (15 mmol) を 100 mL 三口フラスコに入れ、当該フラスコ内を窒素置換した。この混合物へトルエン 30 mL、トリ (*tert* - ブチル) ホスフィンの 10 % ヘキサン溶液 0.2 mL を加えて、当該フラスコ内をアスピレータにより減圧することで、この混合物を脱気したのち、フラスコ内を窒素置換した。この混合物にビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) 0.058 g (0.10 mmol) を加え、窒素気流下、80 で 15 時間攪拌した。攪拌後、この混合物にトルエンを加え、この懸濁液を飽和炭酸ナトリウム水溶液、飽和食塩水の順に洗浄した。洗浄後、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。乾燥後、この混合物を吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液をセラライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 531 - 16855) を通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を濃縮して得た化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。カラムクロマトグラフィーはまずトルエンを展開溶媒として用い、次いでトルエン: 酢酸エチル = 4: 1 の混合溶媒を展開溶媒として用いることにより行った。得られたフラクションを濃縮して得た固体にアセトンを加え、超音波を照射して洗浄した。この混合物を吸引ろ過して固体を回収した。回収した固体をクロロホルムとヘキサンの混合溶媒で再結晶したところ、粉末状白色固体を収量 2.0 g、収率 64 % で得た。

20

30

## 【0181】

得られた白色固体 1.1 g の昇華精製をトレインサブリメーション法により行った。昇華精製は 3.0 Pa の減圧下、アルゴンの流量を 5 mL / min とし 240 で 16 時間行った。収量 0.98 g で収率は 89 % であった。

## 【0182】

核磁気共鳴法 (NMR) によって、この化合物が、3 - フェニル - 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] - 9H - カルバゾール (略称: CO11II) であることを確認した。

## 【0183】

得られた化合物の  $^1\text{H}$  NMR データを以下に示す。

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ , 300 MHz):  $\delta$  = 7.30 - 7.76 (m, 13H)、7.79 (d,  $J$  = 8.3 Hz, 2H)、8.14 - 8.24 (m, 3H)、8.35 (sd,  $J$  = 1.5 Hz, 1H)、8.39 (d,  $J$  = 8.8 Hz, 2H)

## 【0184】

また、 $^1\text{H}$  NMR チャートを図 10 (A)、図 10 (B) に示す。なお、図 10 (B) は、図 10 (A) における 7.0 ppm ~ 9.0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。

## 【0185】

また、示差走査熱量分析装置 (DSC: Differential Scanning

40

50

Calorimetry、パーキンエルマー製、型番：Pyris 1 DSC)を用いてCO11IIのガラス転移温度を測定した結果、88であった。これらの結果から、CO11IIは良好な耐熱性を有する材料であることが分かった。

#### 【0186】

CO11IIのトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを図11に示す。また、CO11IIの薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを図12に示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計(日本分光株式会社製、V550型)を用いた。溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着したサンプルを作製して測定を行った。溶液についての吸収スペクトルは石英セルにトルエンのみを入れたスペクトルを差し引いたものを、薄膜についての吸収スペクトルは石英基板のスペクトルを差し引いたものを、図11および図12に示す。図11および図12において、横軸は波長(nm)、縦軸は強度(任意単位)を表す。トルエン溶液の場合には、347nm付近に吸収が見られ、最大発光波長は393nm(励起波長349nm)であった。また、薄膜の場合には、353nm付近に吸収が見られ、最大発光波長は437nm(励起波長359nm)であった。

#### 【0187】

また、CO11IIの薄膜状態におけるHOMO準位とLUMO準位の測定を行った。HOMO準位の値は、大気中の光電子分光法(理研計器社製、AC-2)で測定したイオン化ポテンシャルの値を、負の値に換算することにより得た。また、LUMO準位の値は、図12に示したCO11IIの薄膜の吸収スペクトルのデータを用い、直接遷移を仮定したTaucプロットから吸収端を求め、その吸収端を光学的エネルギーギャップとしてHOMO準位の値に加算することにより得た。その結果、CO11IIのHOMO準位は、-5.71eVであり、エネルギーギャップは、3.26eVであり、LUMO準位は、-2.45eVであった。

#### 【0188】

よって、CO11IIは大きなエネルギーギャップを有する物質であることがわかった。

#### 【0189】

また、CO11IIの酸化還元反応特性を測定した。酸化還元反応特性は、サイクリックボルタムメトリ(CV)測定によって調査した。なお、測定には、電気化学アナライザー(ビー・エー・エス(株)製、型番：ALSモデル600A)を用いた。

#### 【0190】

CV測定における溶液は、溶媒として脱水ジメチルホルムアミド(DMF)((株)アルドリッチ製、99.8%、カタログ番号;22705-6)を用い、支持電解質である過塩素酸テトラ-n-ブチルアンモニウム( $n\text{-Bu}_4\text{NClO}_4$ )((株)東京化成製、カタログ番号;T0836)を100mmol/Lの濃度となるように溶解させ、さらに測定対象を1mmol/Lの濃度となるように調製した。また、作用電極としては白金電極(ビー・エー・エス(株)製、PTE白金電極)を、補助電極としては白金電極(ビー・エー・エス(株)製、VC-3用Ptカウンター電極(5cm))を、参照電極としてはAg/Ag<sup>+</sup>電極(ビー・エー・エス(株)製、RE7非水溶媒系参照電極)をそれぞれ用いた。なお、測定は室温で行った。

#### 【0191】

CO11IIの酸化反応特性は、基準電極に対する作用電極の電位を-0.155Vから1.05Vまで変化させた後、1.05Vから-0.155Vまで変化させる走査を1サイクルとし、これを100サイクル測定することで調査した。なお、CV測定のスキャン速度は0.1V/sに設定した。

#### 【0192】

CO11IIの還元反応特性は、基準電極に対する作用電極の電位を-1.31Vから-2.45Vまで変化させた後、-2.45Vから-1.31Vまで変化させる走査を1サイクルとし、これを100サイクル測定することで調査した。なお、CV測定のスキャン速度は0.1V/sに設定した。

#### 【0193】

図 1 3 に C O 1 1 I I の酸化側の C V 測定結果を、図 1 4 に還元側の C V 測定結果を示す。図 1 3 および図 1 4 において、横軸は基準電極に対する作用電極の電位 ( V ) を表し、縦軸は作用電極と補助電極との間に流れた電流値 (  $\mu$  A ) を表す。図 1 3 から、+ 0 . 9 3 V 付近 ( v s . A g / A g <sup>+</sup> 電極 ) に酸化を示す電流が観測された。図 1 4 から、- 2 . 3 4 V 付近 ( v s . A g / A g <sup>+</sup> 電極 ) に還元を示す電流が観測された。

#### 【 0 1 9 4 】

1 0 0 サイクルもの走査を繰り返しているにもかかわらず、酸化反応及び還元反応において、C V 曲線のピーク位置に大きな変化が見られないことから、開示する発明の一態様であるオキサジアゾール誘導体は酸化還元反応の繰り返しに対して安定であることが分かった。

10

#### 【 0 1 9 5 】

また、C O 1 1 I I の基底状態における最適分子構造を、密度汎関数法 ( D F T ) を用いて計算した。D F T の全エネルギーは、ポテンシャルエネルギー、電子間静電エネルギー、電子の運動エネルギー、その他、複雑な電子間の相互作用を全て含む交換相関エネルギーの和で表される。D F T では、交換相関相互作用を、電子密度で表現された一電子ポテンシャルの汎関数 ( 関数の関数 ) で近似しているため、高い計算精度が得られる。ここでは、混合汎関数である B 3 L Y P を用いて、交換相関エネルギーに係る各パラメータの重みを規定した。また、基底関数として、6 - 3 1 1 ( それぞれの原子価軌道に三つの短縮関数を用いた t r i p l e s p l i t v a l e n c e 基底系の基底関数 ) を全ての原子に適用した。上述の基底関数により、例えば、水素原子であれば、1 s ~ 3 s の軌道が考慮され、また、炭素原子であれば、1 s ~ 4 s 、2 p ~ 4 p の軌道が考慮されることになる。さらに、計算精度向上のため、分極基底系として、水素原子には p 関数を、水素原子以外には d 関数を加えた。

20

#### 【 0 1 9 6 】

なお、量子化学計算プログラムとしては、G a u s s i a n 0 3 を使用した。計算は、ハイパフォーマンスコンピュータ ( S G I 社製、A l t i x 4 7 0 0 ) を用いて行った。

#### 【 0 1 9 7 】

図 3 0 に、計算によって求めた C O 1 1 I I の最高被占有軌道 ( H O M O ) と最低空軌道 ( L U M O ) を示す。図 3 0 ( A ) は、最高被占有軌道 ( H O M O ) を表すものであり、図 3 0 ( B ) は、最低空軌道 ( L U M O ) を表すものである。図中の球は、C O 1 1 I I を構成する原子を表しており、原子の周辺に存在する雲状物は、対象とする軌道を表している。なお、図 3 0 は、計算結果の可視化が可能なソフトウェア G a u s s V i e w 4 . 1 によって、最適分子構造の計算結果を可視化したものである。

30

#### 【 0 1 9 8 】

図 3 0 より、C O 1 1 I I においては、最高被占有軌道がカルバゾール基に、最低空軌道がオキサジアゾール基に存在していることが分かる。つまり、C O 1 1 I I のホール輸送性にはカルバゾール基が、電子輸送性にはオキサジアゾール基が寄与しているといえる。これにより、C O 1 1 I I の、高いバイポーラ性が理解できる。

#### 【 実施例 2 】

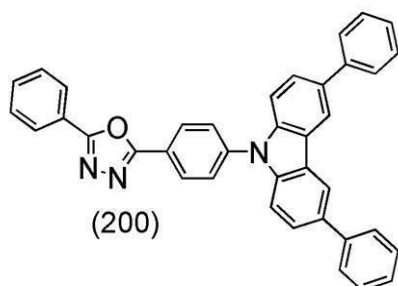
#### 【 0 1 9 9 】

本実施例では、構造式 ( 2 0 0 ) で表されるオキサジアゾール誘導体 ( またはカルバゾール誘導体 ) 、3 , 6 - ジフェニル - 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 I I I ) の合成方法について具体的に説明する。

40

#### 【 0 2 0 0 】

## 【化 2 1】



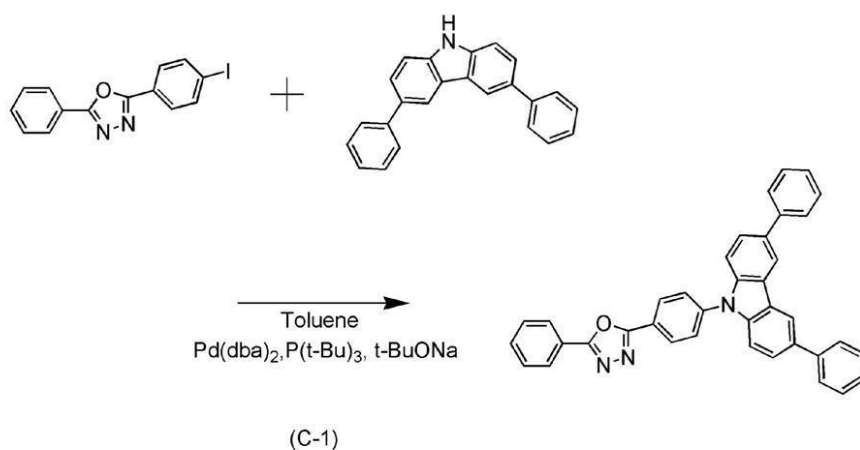
10

## 【 0 2 0 1】

3, 6 - ジフェニル - 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 - カルバゾールの合成スキームを ( C - 1 ) に示す。

## 【 0 2 0 2】

## 【化 2 2】



20

## 【 0 2 0 3】

2 - ( 4 - ヨードフェニル ) - 5 - フェニル - 1, 3, 4 - オキサジアゾール 1.0 g ( 2.9 mmol )、3, 6 - ジフェニル - 9 H - カルバゾール 0.92 g ( 2.9 mmol )、ナトリウム tert - ブトキシド 0.61 g ( 6.3 mmol ) を 100 mL 三口フラスコに入れ、当該フラスコ内を窒素置換した。この混合物へトルエン 15 mL、トリ ( tert - ブチル ) ホスフィンの 10 % ヘキサン溶液 0.10 mL を加えて、当該フラスコ内をアスピレータにより減圧することで、この混合物を脱気したのち、フラスコ内を窒素置換した。この混合物にビス ( ジベンジリデンアセトン ) パラジウム ( 0 ) 0.025 g ( 0.043 mmol ) を加え、窒素気流下、110 °C で 10 時間攪拌した。攪拌後、この混合物にトルエンを加え、有機層を飽和炭酸ナトリウム水溶液、飽和食塩水の順に洗浄した。洗浄後、有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。乾燥後、この混合物を吸引ろ過してろ液を得た。得られたろ液を濃縮して得た化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製を行った。カラムクロマトグラフィーはまず、トルエンを展開溶媒として用い、次いでトルエン : 酢酸エチル = 8 : 1 の混合溶媒を展開溶媒として用いることにより行った。得られたフラクションを濃縮して得た固体にアセトンを加え、超音波を照射して洗浄した。この混合物を吸引ろ過して固体を回収した。回収した固体をクロロホルムとメタノールの混合溶媒で再結晶したところ、粉末状白色固体を収量 0.80 g、収率 52 % で得た。

30

40

## 【 0 2 0 4】

得られた白色固体 0.80 g の昇華精製をトレインサブリメーション法により行った。昇華精製は 2.7 Pa の減圧下、アルゴンの流量を 5 mL / min として 260 °C で 15 時間行った。収量 0.61 g で収率は 76 % であった。

50

## 【0205】

核磁気共鳴法 (NMR) によって、この化合物が、3, 6 - ジフェニル - 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 : CO11III ) であることを確認した。

## 【0206】

得られた化合物の  $^1\text{H}$  NMR データを以下に示す。

$^1\text{H}$  NMR (  $\text{CDCl}_3$ , 300 MHz ) :  $\delta$  = 7.29 - 7.83 ( m, 19 H )、8.13 - 8.21 ( m, 2 H )、8.35 - 8.41 ( m, 4 H )

## 【0207】

また、 $^1\text{H}$  NMR チャートを図 15 ( A )、図 15 ( B ) に示す。なお、図 15 ( B ) は、図 15 ( A ) における 7.0 ppm ~ 9.0 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。

10

## 【0208】

また、示差走査熱量分析装置 ( DSC : Differential Scanning Calorimetry、パーキンエルマー製、型番 : Pyris 1 DSC ) を用いて CO11III のガラス転移温度を測定した結果、114 であつた。これらの結果から、CO11III は良好な耐熱性を有する材料であることが分かった。

## 【0209】

CO11III のトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを図 16 に示す。また、CO11III の薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルを図 17 に示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計 ( 日本分光株式会社製、V550 型 ) を用いた。溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着してサンプルを作製して測定を行った。溶液についての吸収スペクトルは石英セルにトルエンのみを入れたスペクトルを差し引いたものを、薄膜についての吸収スペクトルは石英基板のスペクトルを差し引いたものを、図 16 および図 17 に示す。図 16 および図 17 において、横軸は波長 ( nm )、縦軸は強度 ( 任意単位 ) を表す。トルエン溶液の場合には、351 nm 付近に吸収が見られ、最大発光波長は 395 nm ( 励起波長 351 nm ) であつた。また、薄膜の場合には、360 nm 付近に吸収が見られ、最大発光波長は 447 nm ( 励起波長 366 nm ) であつた。

20

## 【0210】

また、CO11III の薄膜状態における HOMO 準位と LUMO 準位の測定を行った。HOMO 準位の値は、大気中の光電子分光法 ( 理研計器社製、AC - 2 ) で測定したイオン化ポテンシャルの値を、負の値に換算することにより得た。また、LUMO 準位の値は、図 17 に示した CO11III の薄膜の吸収スペクトルのデータを用い、直接遷移を仮定した Tauc プロットから吸収端を求め、その吸収端を光学的エネルギーギャップとして HOMO 準位の値に加算することにより得た。その結果、CO11III の HOMO 準位は、- 5.67 eV であり、エネルギーギャップは、3.21 eV であり、LUMO 準位は、- 2.46 eV であつた。

30

## 【0211】

よって、CO11III は大きなエネルギーギャップを有する物質であることがわかった。

40

## 【0212】

また、CO11III の酸化還元反応特性を測定した。酸化還元反応特性は、サイクリックボルタムメトリ ( CV ) 測定によって調査した。なお、測定には、電気化学アナライザー ( ビー・イー・エス ( 株 ) 製、型番 : ALS モデル 600 A ) を用いた。

## 【0213】

CV 測定における溶液は、溶媒として脱水ジメチルホルムアミド ( DMF ) ( ( 株 ) アルドリッチ製、99.8%、カタログ番号 ; 22705 - 6 ) を用い、支持電解質である過塩素酸テトラ - n - ブチルアンモニウム ( n - Bu<sub>4</sub>NC1O<sub>4</sub> ) ( ( 株 ) 東京化成製、カタログ番号 ; T0836 ) を 100 mmol / L の濃度となるように溶解させ、さらに

50

測定対象を  $1 \text{ mmol/L}$  の濃度となるように調製した。また、作用電極としては白金電極（ビー・エー・エス（株）製、PTE 白金電極）を、補助電極としては白金電極（ビー・エー・エス（株）製、VC-3 用 Pt カウンター電極（5 cm））を、参照電極としては  $\text{Ag}/\text{Ag}^+$  電極（ビー・エー・エス（株）製、RE7 非水溶媒系参照電極）をそれぞれ用いた。なお、測定は室温で行った。

#### 【0214】

CO11III の酸化反応特性は、基準電極に対する作用電極の電位を  $0.268 \text{ V}$  から  $1.05 \text{ V}$  まで変化させた後、 $1.05 \text{ V}$  から  $0.268 \text{ V}$  まで変化させる走査を 1 サイクルとし、これを 100 サイクル測定することで調査した。なお、CV 測定のスキャン速度は  $0.1 \text{ V/s}$  に設定した。

10

#### 【0215】

CO11III の還元反応特性は、基準電極に対する作用電極の電位を  $-1.43 \text{ V}$  から  $-2.45 \text{ V}$  まで変化させた後、 $-2.45 \text{ V}$  から  $-1.43 \text{ V}$  まで変化させる走査を 1 サイクルとし、これを 100 サイクル測定することで調査した。なお、CV 測定のスキャン速度は  $0.1 \text{ V/s}$  に設定した。

#### 【0216】

図 18 に CO11III の酸化側の CV 測定結果を、図 19 に還元側の CV 測定結果を示す。図 18 および図 19 において、横軸は基準電極に対する作用電極の電位（V）を表し、縦軸は作用電極と補助電極との間に流れた電流値（ $\mu\text{A}$ ）を表す。図 18 から、 $+0.91 \text{ V}$  付近（vs.  $\text{Ag}/\text{Ag}^+$  電極）に酸化を示す電流が観測された。図 19 から、 $-2.34 \text{ V}$  付近（vs.  $\text{Ag}/\text{Ag}^+$  電極）に還元を示す電流が観測された。

20

#### 【0217】

100 サイクルもの走査を繰り返しているにもかかわらず、酸化反応及び還元反応において、CV 曲線のピーク位置に大きな変化が見られないことから、開示する発明の一態様であるオキサジアゾール誘導体は酸化還元反応の繰り返しに対して安定であることが分かった。

#### 【0218】

また、CO11III の基底状態における最適分子構造を、先の実施例における CO11II と同様の手法によって計算した。図 31 に、計算によって求めた CO11III の最高被占有軌道（HOMO）と最低空軌道（LUMO）を示す。図 31（A）は、最高被占有軌道（HOMO）を表すものであり、図 31（B）は、最低空軌道（LUMO）を表すものである。図中の球は、CO11III を構成する原子を表しており、原子の周辺に存在する雲状物は、対象とする軌道を表している。

30

#### 【0219】

図 31 より、CO11III においては、最高被占有軌道がカルバゾール基に、最低空軌道はオキサジアゾール基に存在していることが分かる。つまり、CO11III のホール輸送性にはカルバゾール基が、電子輸送性にはオキサジアゾール基が寄与しているといえる。これにより、CO11III の、高いバイポーラ性が理解できる。

#### 【実施例 3】

#### 【0220】

本実施例では、先の実施の形態に記載のオキサジアゾール誘導体を発光層のホスト材料として用いた発光素子の作製方法、および素子特性の測定結果を示す。具体的には、先の実施例で説明した 3-フェニル-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]-9H-カルバゾール（略称：CO11II）を用いて形成した発光素子 1、および 3,6-ジフェニル-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]-9H-カルバゾール（略称：CO11III）を用いて形成した発光素子 2 について示す。

40

#### 【0221】

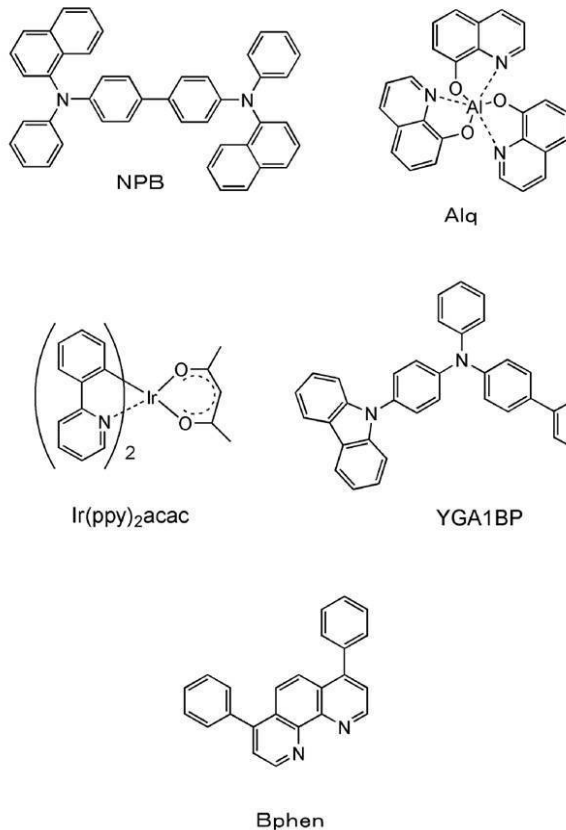
なお、本実施例における発光素子の構造は、図 9 に示すものであり、発光層である第 3 の層 913 に上述のオキサジアゾール誘導体を用いている。本実施例で用いる有機化合物の

50

構造式を以下に示す。

【 0 2 2 2 】

【 化 2 3 】



10

20

【 0 2 2 3 】

まず、ガラス基板である基板 9 0 0 上に、酸化珪素を含む酸化インジウム - 酸化スズをスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 9 0 1 を形成した。なお、その膜厚は 1 1 0 n m とし、電極面積は 2 m m × 2 m m とした。

30

【 0 2 2 4 】

次に、第 1 の電極 9 0 1 上に複数の層が積層された E L 層 9 0 2 を形成する。本実施例において、E L 層 9 0 2 は、正孔注入層である第 1 の層 9 1 1、正孔輸送層である第 2 の層 9 1 2、発光層である第 3 の層 9 1 3、電子輸送層である第 4 の層 9 1 4、電子注入層である第 5 の層 9 1 5 が順次積層された構造を有している。

【 0 2 2 5 】

第 1 の電極 9 0 1 が形成された面が下方となるように、第 1 の電極 9 0 1 が形成された基板 9 0 0 を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、 $10^{-4}$  P a 程度まで減圧した後、第 1 の電極 9 0 1 上に、4, 4' - ビス [ N - ( 1 - ナフチル ) - N - フェニルアミノ ] ビフェニル ( 略称 : N P B ) と酸化モリブデン ( V I ) とを共蒸着することにより、正孔注入層である第 1 の層 9 1 1 を形成した。その膜厚は 4 0 n m とし、N P B と酸化モリブデン ( V I ) の比率が、重量比で 4 : 1 = ( N P B : 酸化モリブデン ) となるように蒸着レートを調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法である。

40

【 0 2 2 6 】

次に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、第 1 の層 9 1 1 上に正孔輸送性材料を 2 0 n m の膜厚となるように成膜し、正孔輸送層である第 2 の層 9 1 2 を形成した。なお、第 2 の層 9 1 2 には、4 - ( 9 H - カルバゾール - 9 - イル ) - 4' - フェニルトリフェニルアミン ( 略称 : Y G A 1 B P ) を用いた。

50



## 【 0 2 2 7 】

次に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、第 2 の層 9 1 2 上に、発光層である第 3 の層 9 1 3 を形成した。なお、発光素子 1 の場合には、3 - フェニル - 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 I I ) とビス ( 2 - 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 y ) <sub>2</sub> a c a c ) とを共蒸着することにより第 3 の層 9 1 3 を 4 0 n m の膜厚で形成した。ここで、C O 1 1 I I と I r ( p p y ) <sub>2</sub> a c a c との重量比は、1 : 0 . 0 6 ( = C O 1 1 I I : I r ( p p y ) <sub>2</sub> a c a c ) となるように蒸着レートを調節した。また、発光素子 2 の場合には、C O 1 1 I I ( 略称 ) に代

10

## 【 0 2 2 8 】

さらに、第 3 の層 9 1 3 上に抵抗加熱による蒸着法を用いて、トリス ( 8 - キノリノラト ) アルミニウム ( I I I ) ( 略称 : A l q ) を 1 0 n m 、その上にバソフェナントロリン ( 略称 : B P h e n ) を 2 0 n m の膜厚となるように成膜し、電子輸送層である第 4 の層 9 1 4 を形成した。

## 【 0 2 2 9 】

そして、第 4 の層 9 1 4 上に、フッ化リチウム ( L i F ) を 1 n m の膜厚となるように成膜することにより、電子注入層である第 5 の層 9 1 5 を形成した。

20

## 【 0 2 3 0 】

最後に、抵抗加熱による蒸着法を用い、アルミニウムを 2 0 0 n m の膜厚となるように成膜することにより、第 2 の電極 9 0 3 を形成した。

## 【 0 2 3 1 】

以上により得られた発光素子 1 および発光素子 2 に対して、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光素子が大気に曝されないように封止する作業を行った後、これらの発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温 ( 2 5 ) に保たれた雰囲気で行った。

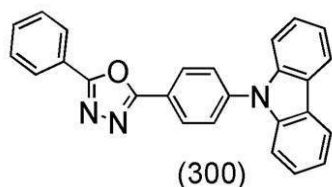
## 【 0 2 3 2 】

なお、比較のため、発光層のホスト材料として 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 ) を用いて、上述の発光素子 1 または発光素子 2 と同じ条件で、発光素子 0 を作製した。なお、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 ) は構造式 ( 3 0 0 ) で表される。

30

## 【 0 2 3 3 】

## 【 化 2 4 】



40

## 【 0 2 3 4 】

発光素子 0 ~ 発光素子 2 の電流密度 - 輝度特性を図 2 0 に、電圧 - 輝度特性を図 2 1 に、輝度 - 電流効率特性を図 2 2 に示す。図 2 0 では、縦軸が輝度 ( c d / m <sup>2</sup> ) 、横軸が電流密度 ( m A / c m <sup>2</sup> ) を表し、図 2 1 では縦軸が輝度 ( c d / m <sup>2</sup> ) 、横軸が電圧 ( V ) を表し、図 2 2 では、縦軸が電流効率 ( c d / A ) 、横軸が輝度 ( c d / m <sup>2</sup> ) を表している。なお、発光素子 0 ~ 発光素子 2 のパワー効率はそれぞれ、4 6 ( l m / W ) 、4 9 ( l m / W ) 、4 3 ( l m / W ) であった。つまり、パワー効率の観点からは、これら

50

の素子に大きな違いはないといえる。

【0235】

また、初期輝度  $1000 \text{ cd/m}^2$  で DC 定電流駆動した際の、発光素子 0 ~ 発光素子 2 の発光スペクトルを図 23 に示す。図 23 から分かるように、発光素子 1 および発光素子 2 の発光スペクトルは、比較対象である発光素子 0 の発光スペクトルと大きく異なるところがない。つまり、本実施例における発光素子 1 および発光素子 2 においても、オキサジアゾール誘導体は、ホスト材料として機能していることになる。

【0236】

また、発光素子 0 ~ 発光素子 2 の時間 - 規格化輝度特性を図 24 に示す。図 24 では縦軸が規格化輝度 (%)、横軸が時間 (h) を表している。図 24 から分かるように、発光素子 0 の寿命は 240 時間程度であるのに対して、発光素子 1 の寿命は 540 時間程度、発光素子 2 の寿命は 530 時間程度にまで向上している。ここで、上述の寿命とは、規格化された輝度が、初期値の 50 % となる時間をいうものとする。

【0237】

以上のように、発光素子 1 および発光素子 2 はパワー効率の点では比較対象である発光素子 0 と大きく変わるところがないにも関わらず、寿命が 2 倍以上にまで向上している。このため、先の実施の形態において示したオキサジアゾール誘導体を発光層のホスト材料として用いることで、消費電力を維持しつつ、寿命を大幅に向上した信頼性の高い発光素子を得ることができる。

【実施例 4】

【0238】

本実施例では、先の実施の形態に記載のオキサジアゾール誘導体を発光層のホスト材料として用いた発光素子の作製方法、および素子特性の測定結果を示す。具体的には、先の実施例で説明した 3 - フェニル - 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 : CO11II ) を用いて形成した発光素子 3 について示す。

【0239】

なお、本実施例における発光素子の構造は、図 9 に示すものであり、発光層である第 3 の層 913 に上述のオキサジアゾール誘導体を用いている。

【0240】

まず、ガラス基板である基板 900 上に、酸化珪素を含む酸化インジウム - 酸化スズをスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 901 を形成した。なお、その膜厚は  $110 \text{ nm}$  とし、電極面積は  $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$  とした。

【0241】

次に、第 1 の電極 901 上に複数の層が積層された EL 層 902 を形成する。本実施例において、EL 層 902 は、正孔注入層である第 1 の層 911、正孔輸送層である第 2 の層 912、発光層である第 3 の層 913、電子輸送層である第 4 の層 914、電子注入層である第 5 の層 915 が順次積層された構造を有している。

【0242】

第 1 の電極 901 が形成された面が下方となるように、第 1 の電極 901 が形成された基板 900 を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、 $10^{-4} \text{ Pa}$  程度まで減圧した後、第 1 の電極 901 上に、4 - フェニル - 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 : PCBA1BP ) と酸化モリブデン ( VI ) とを共蒸着することにより、正孔注入層である第 1 の層 911 を形成した。その膜厚は  $50 \text{ nm}$  とし、PCBA1BP と酸化モリブデン ( VI ) の比率が、重量比で  $4 : 2 = ( \text{PCBA1BP} : \text{酸化モリブデン} )$  となるように蒸着レートを調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法である。

【0243】

次に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、第 1 の層 911 上に正孔輸送性材料を  $10 \text{ nm}$  の膜厚となるように成膜し、正孔輸送層である第 2 の層 912 を形成した。なお、第 2 の層

10

20

30

40

50

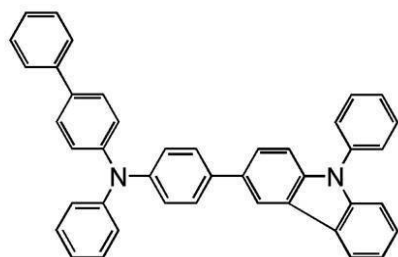
912には、上述の4-フェニル-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン(略称:PCBA1BP)を用いた。

【0244】

次に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、第2の層912上に、発光層である第3の層913を形成した。本実施例では、3-フェニル-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]-9H-カルバゾール(略称:CO11II)と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)とビス{2-(4-フルオロフェニル)-3,5-ジメチルピラジナト}(ピコリナート)イリジウム(III)(略称:Ir(dmFppr)<sub>2</sub>pic)とを共蒸着することにより第3の層913を40nmの膜厚で形成した。ここで、CO11IIとPCBA1BPとIr(dmFppr)<sub>2</sub>picとの重量比は、1:0.1:0.12(=CO11II:PCBA1BP:Ir(dmFppr)<sub>2</sub>pic)となるように蒸着レートを調節した。なお、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)は構造式(301)で表され、ビス{2-(4-フルオロフェニル)-3,5-ジメチルピラジナト}(ピコリナート)イリジウム(III)(略称:Ir(dmFppr)<sub>2</sub>pic)は構造式(302)で表される。

【0245】

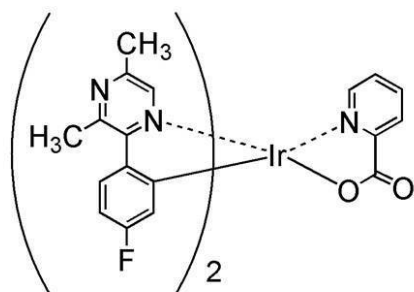
【化25】



(301)

【0246】

【化26】



(302)

【0247】

さらに、第3の層913上に抵抗加熱による蒸着法を用いて、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)(略称:Alq)を10nm、その上にバソフェナントロリン(略称:BPhen)を20nmの膜厚となるように成膜し、電子輸送層である第4の層914を形成した。

【0248】

10

20

30

40

50

そして、第４の層 ９１４ 上に、フッ化リチウム（ $\text{LiF}$ ）を １ｎｍの膜厚となるように成膜することにより、電子注入層である第５の層 ９１５を形成した。

【０２４９】

最後に、抵抗加熱による蒸着法を用い、アルミニウムを ２００ｎｍの膜厚となるように成膜することにより、第２の電極 ９０３を形成した。

【０２５０】

以上により得られた発光素子 ３に対して、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光素子が大気に曝されないように封止する作業を行った後、これらの発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温（２５）に保たれた雰囲気で行った。

【０２５１】

発光素子 ３の電流密度 - 輝度特性を図 ２５に、電圧 - 輝度特性を図 ２６に、輝度 - 電流効率特性を図 ２７に、発光スペクトルを図 ２８に示す。図 ２５では、縦軸が輝度（ $\text{cd}/\text{m}^2$ ）、横軸が電流密度（ $\text{mA}/\text{cm}^2$ ）を表し、図 ２６では縦軸が輝度（ $\text{cd}/\text{m}^2$ ）、横軸が電圧（ $\text{V}$ ）を表し、図 ２７では、縦軸が電流効率（ $\text{cd}/\text{A}$ ）、横軸が輝度（ $\text{cd}/\text{m}^2$ ）を表している。なお、発光素子 ３のパワー効率は、４４（ $\text{lm}/\text{W}$ ）であった。

【０２５２】

また、初期輝度 １０００  $\text{cd}/\text{m}^2$  で DC 定電流駆動した際の、発光素子 ３の時間 - 規格化輝度特性を図 ２９に示す。図 ２９では縦軸が規格化輝度（％）、横軸が時間（ $\text{h}$ ）を表している。図 ２９から分かるように、１００時間経過後の輝度は初期値の ９０％程度であった。寿命は １０００時間を超えるものと推定される。ここで、寿命とは、規格化された輝度が、初期値の ５０％となる時間をいうものとする。

【０２５３】

以上のように、発光素子 ３はパワー効率を保ちつつも、寿命が大幅に向上している。このため、先の実施の形態において示したオキサジアゾール誘導体を発光層のホスト材料として用いることで、消費電力を維持しつつ、寿命を大幅に向上した信頼性の高い発光素子を得ることができる。

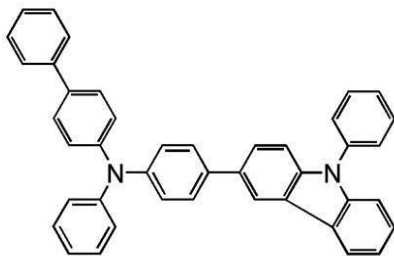
【０２５４】

（参考例）

構造式（３０１）で表される ４ - フェニル - 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：PCBA1BP）の合成方法について具体的に説明する。

【０２５５】

【化 ２７】



(301)

【０２５６】

４ - フェニル - 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：PCBA1BP）の合成スキームを（Ｄ - ４）に示す。

【０２５７】

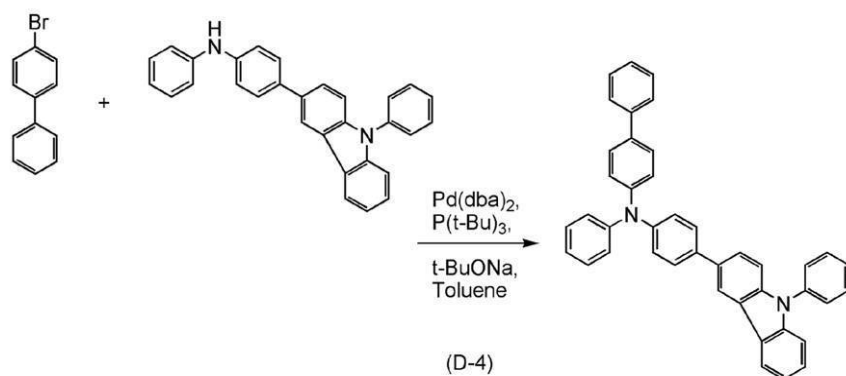
10

20

30

40

## 【化 28】



10

## 【0258】

4 - (9 - フェニル - 9H - カルバゾール - 3 - イル) ジフェニルアミン 2.0 g (4.9 mmol)、4 - ブロモビフェニル 1.1 g (4.9 mmol)、ナトリウム *tert* - ブトキシド 2.0 g (20 mmol) を 100 mL 三口フラスコへ入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物へ、トルエン 50 mL、トリ (*tert* - ブチル) ホスフィン (10 wt % ヘキサン溶液) 0.30 mL を加えた。

## 【0259】

この混合物を、減圧下で攪拌しながら脱気し、脱気後、ピス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) 0.10 g を加えた。次に、この混合物を、80 °C で 5 時間加熱攪拌し、反応させた。反応後、反応混合物にトルエンを加え、この懸濁液をセライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 531-16855)、アルミナ、フロリジル (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 540-00135) を通して吸引ろ過し、ろ液を得た。得られたろ液を飽和炭酸ナトリウム水溶液、飽和食塩水の順に洗浄した。有機層に硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。乾燥後、この混合物を吸引ろ過し、硫酸マグネシウムを除去してろ液を得た。

20

## 【0260】

得られたろ液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーによる精製を行った。シリカゲルカラムクロマトグラフィーはまずトルエン:ヘキサン = 1:9 の混合溶媒を展開溶媒として用い、ついでトルエン:ヘキサン = 3:7 の混合溶媒を展開溶媒として用いることにより行った。得られたフラクションを濃縮して得た固体をクロロホルムとヘキサンの混合溶媒により再結晶したところ、白色粉末状固体の収量は 2.3 g、収率は 84 % であった。

30

## 【0261】

得られた白色固体 1.2 g の昇華精製をトレインサブレーション法により行った。昇華精製は 7.0 Pa の減圧下、アルゴンの流量を 3 mL/min とし 280 °C で 20 時間行った。収量は 1.1 g、収率は 89 % であった。

## 【0262】

上述の方法で得られた化合物を核磁気共鳴法 ( $^1\text{H}$  NMR) により測定した。以下に測定データを示す。

40

$^1\text{H}$  NMR (DMSO- $d_6$ , 300 MHz): ( $\delta$  ppm) = 7.05 - 7.20 (m, 7H), 7.28 - 7.78 (m, 21H), 8.34 (d,  $J$  = 7.8 Hz, 1H), 8.57 (s, 1H)

## 【0263】

測定結果から、構造式 (301) で表される 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) が得られたことがわかる。

## 【0264】

上述の 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

50

ニルアミン（略称：P C B A 1 B P）を用いることで、先の実施例で示した発光素子 3 を形成することができる。

【符号の説明】

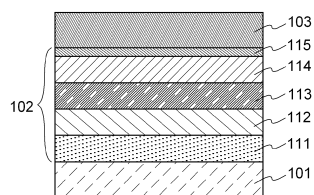
【 0 2 6 5 】

1 0 1	電極	
1 0 2	E L 層	
1 0 3	電極	
1 1 1	正孔注入層	
1 1 2	正孔輸送層	
1 1 3	発光層	10
1 1 4	電子輸送層	
1 1 5	電子注入層	
2 0 1	電極	
2 0 2	E L 層	
2 0 3	電極	
2 1 1	正孔注入層	
2 1 2	正孔輸送層	
2 1 3	発光層	
2 1 4	分離層	
2 1 5	発光層	20
2 1 6	電子輸送層	
2 1 7	電子注入層	
3 0 1	電極	
3 0 2	E L 層	
3 0 3	E L 層	
3 0 4	電極	
3 0 5	電荷発生層	
4 0 1	基板	
4 0 2	絶縁層	
4 0 3	電極	30
4 0 4	隔壁	
4 0 5	開口部	
4 0 6	隔壁	
4 0 7	E L 層	
4 0 8	電極	
5 0 1	基板	
5 0 3	走査線	
5 0 5	領域	
5 0 6	隔壁	
5 0 8	データ線	40
5 0 9	接続配線	
5 1 0	入力端子	
5 1 1 a	F P C	
5 1 1 b	F P C	
5 1 2	入力端子	
6 0 1	素子基板	
6 0 2	画素部	
6 0 3	駆動回路部	
6 0 4	駆動回路部	
6 0 5	シール材	50

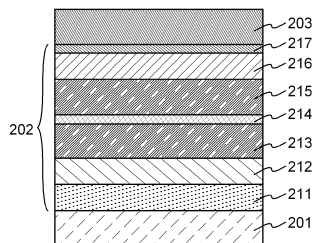
6 0 6	封止基板	
6 0 7	配線	
6 0 8	F P C	
6 0 9	nチャネル型 T F T	
6 1 0	pチャネル型 T F T	
6 1 1	スイッチング用 T F T	
6 1 2	電流制御用 T F T	
6 1 3	陽極	
6 1 4	絶縁物	
6 1 5	E L 層	10
6 1 6	陰極	
6 1 7	発光素子	
6 1 8	空間	
8 0 1	照明装置	
8 0 2	照明装置	
8 0 3	卓上照明器具	
9 0 0	基板	
9 0 1	電極	
9 0 2	E L 層	
9 0 3	電極	20
9 1 1	層	
9 1 2	層	
9 1 3	層	
9 1 4	層	
9 1 5	層	
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	30
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	
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	40
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	
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	50

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
7 4 0 5	スピーカ
7 4 0 6	マイク
7 5 0 1	照明部
7 5 0 2	傘
7 5 0 3	可変アーム
7 5 0 4	支柱
7 5 0 5	台
7 5 0 6	電源

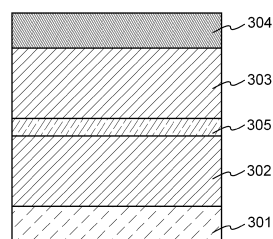
【図 1】



【図 2】

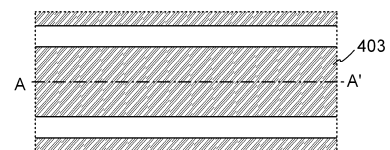


【図 3】

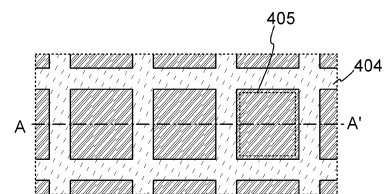


【図 4】

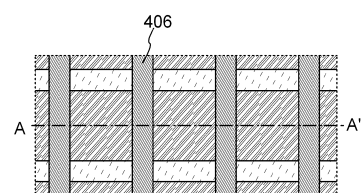
(A)



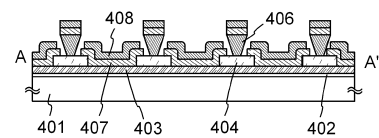
(B)



(C)

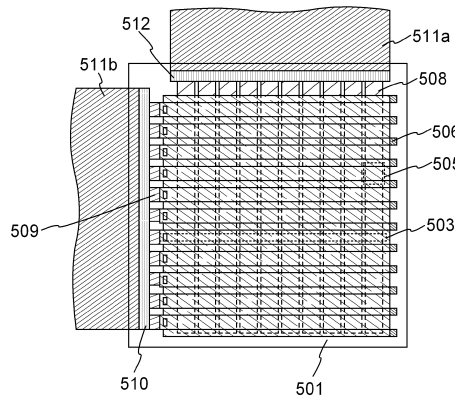


(D)

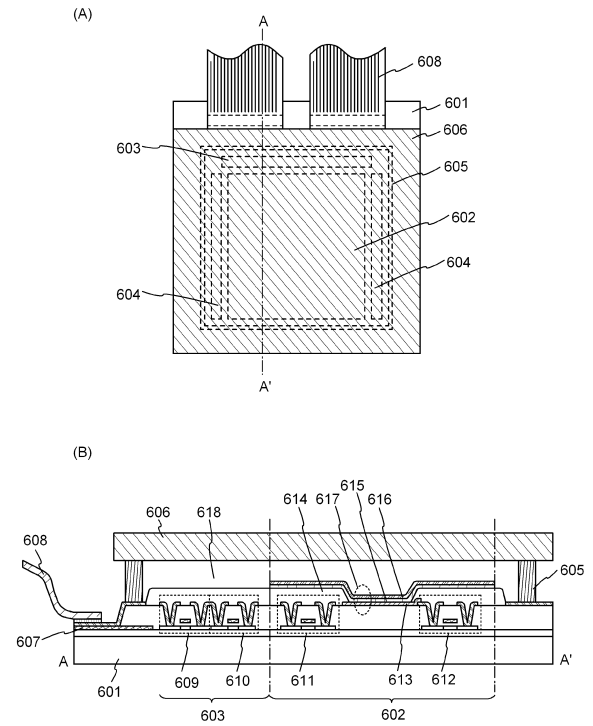




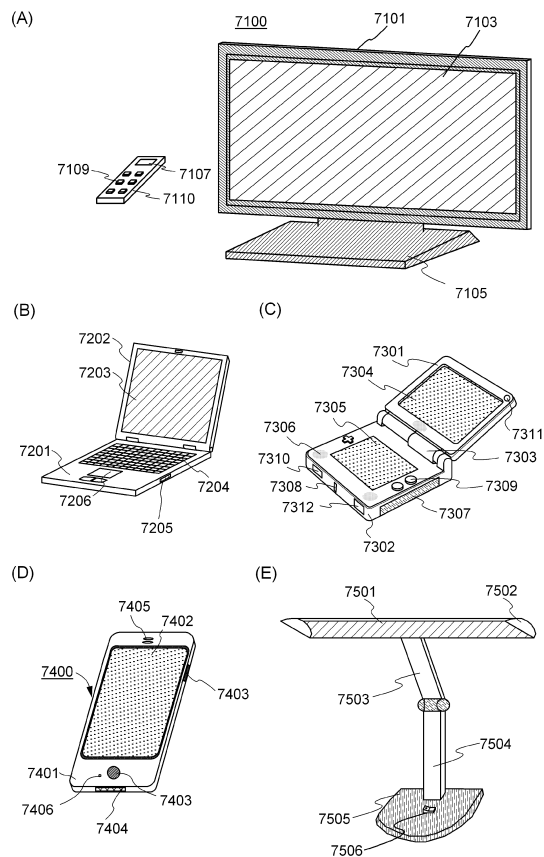
【図 5】



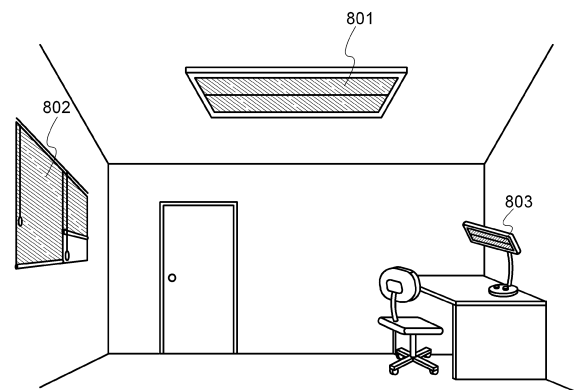
【図 6】



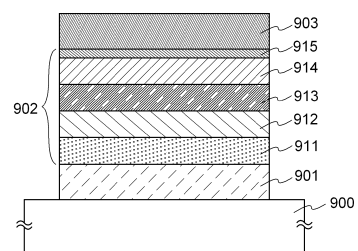
【図 7】



【図 8】

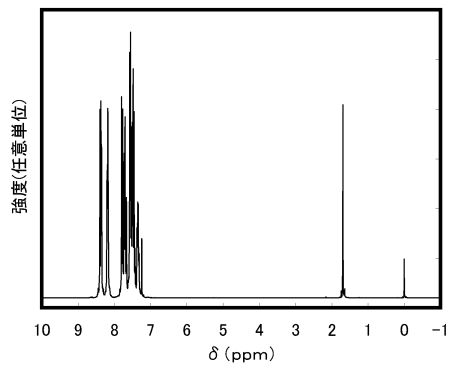


【図 9】

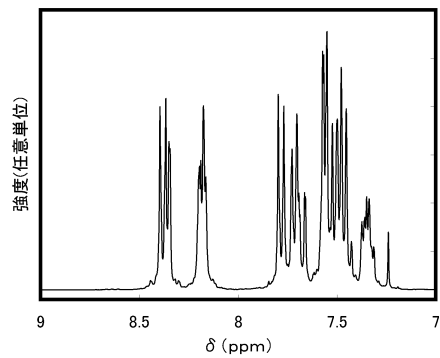


【図 10】

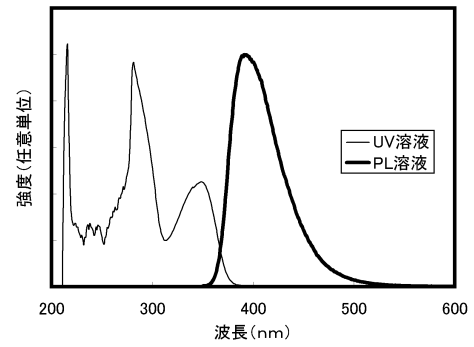
(A)



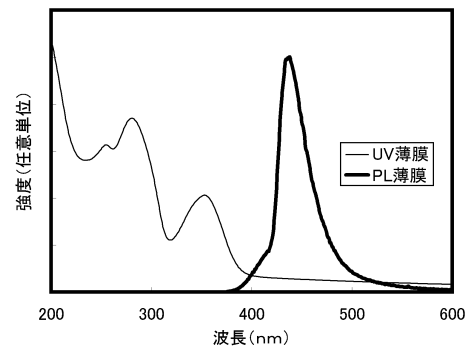
(B)



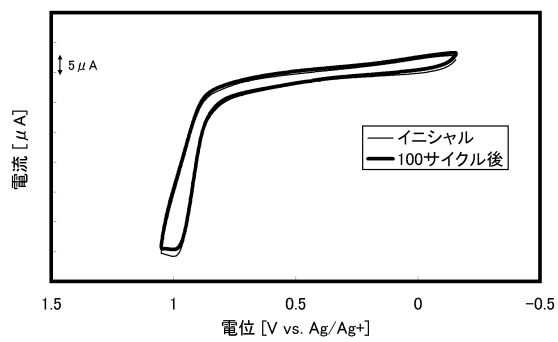
【図 11】



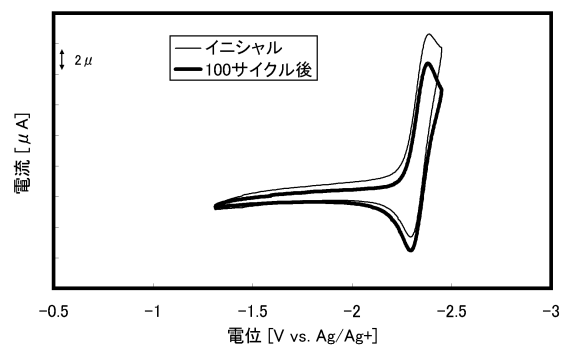
【図 12】



【図 13】

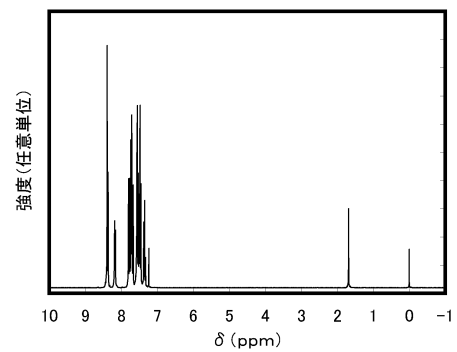


【図 14】

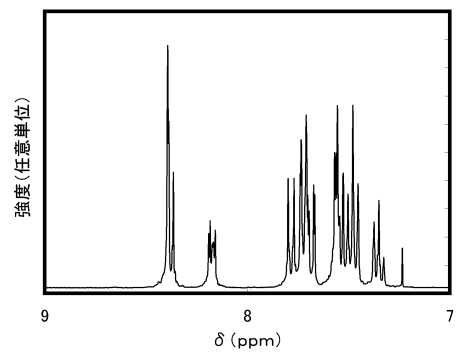


【図 15】

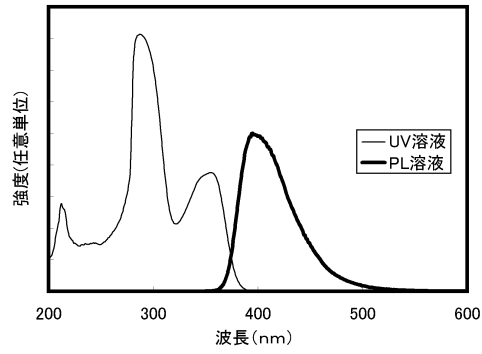
(A)



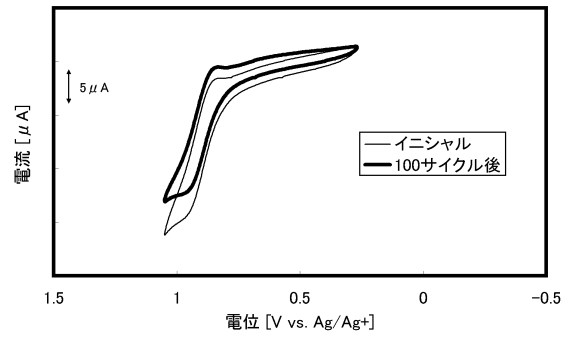
(B)



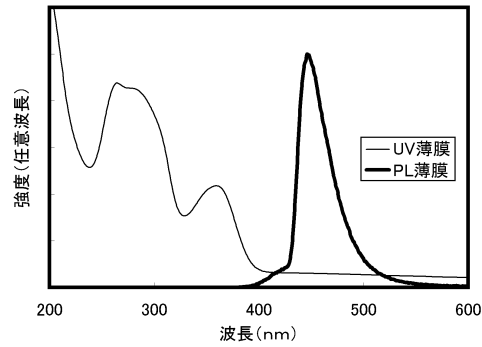
【図 16】



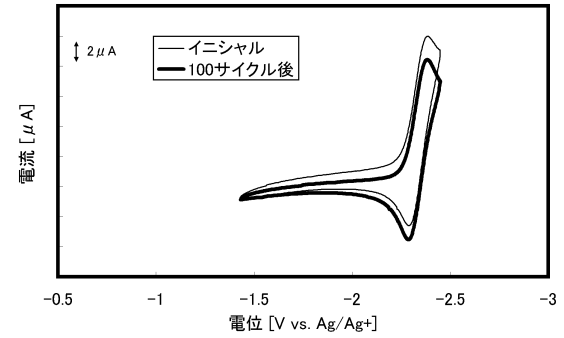
【図 18】



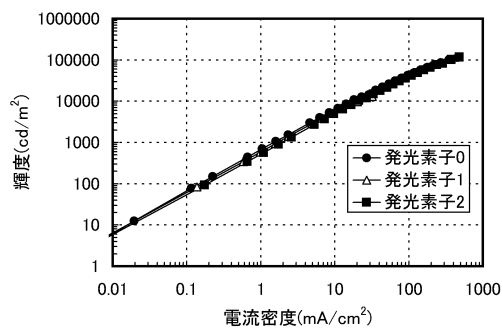
【図 17】



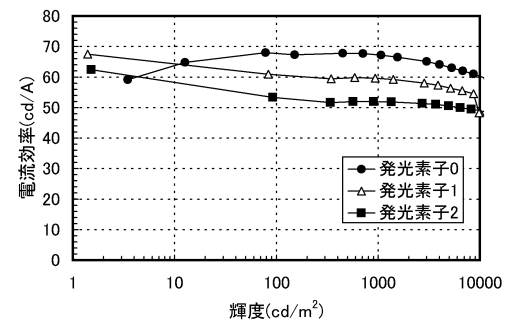
【図 19】



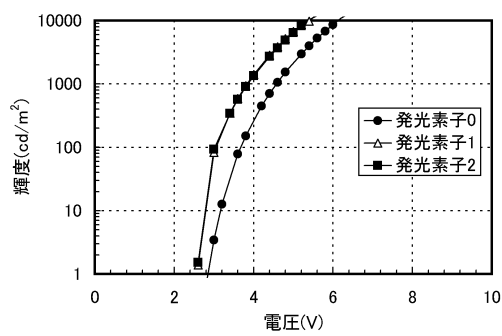
【図 20】



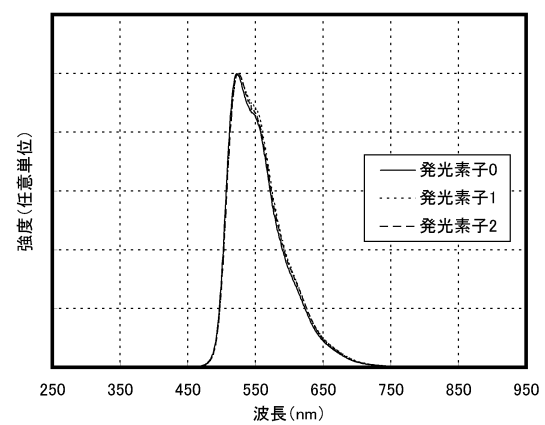
【図 22】



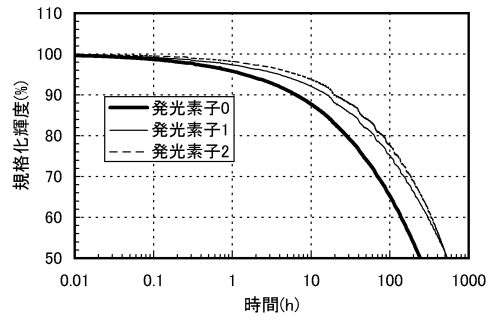
【図 21】



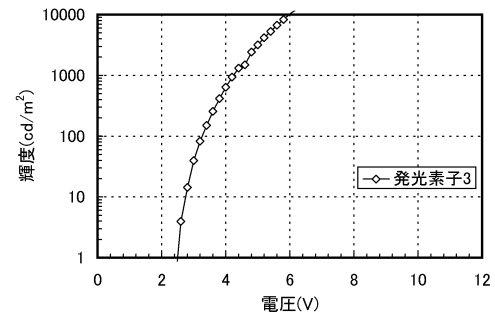
【図 23】



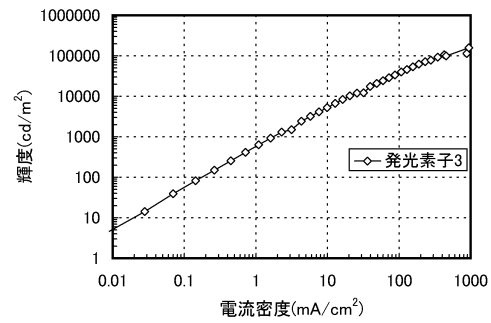
【図 2 4】



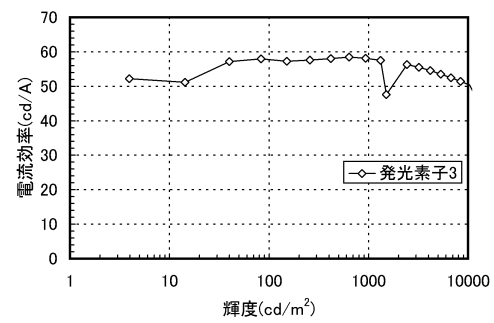
【図 2 6】



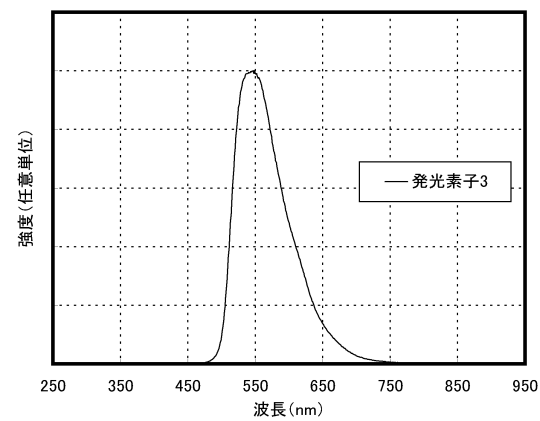
【図 2 5】



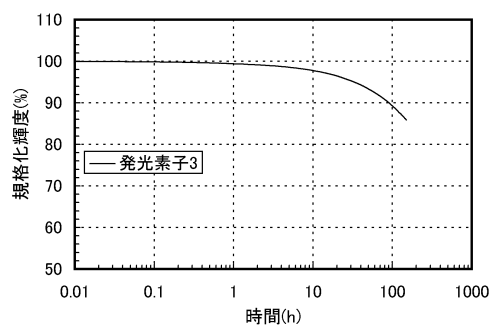
【図 2 7】



【図 2 8】

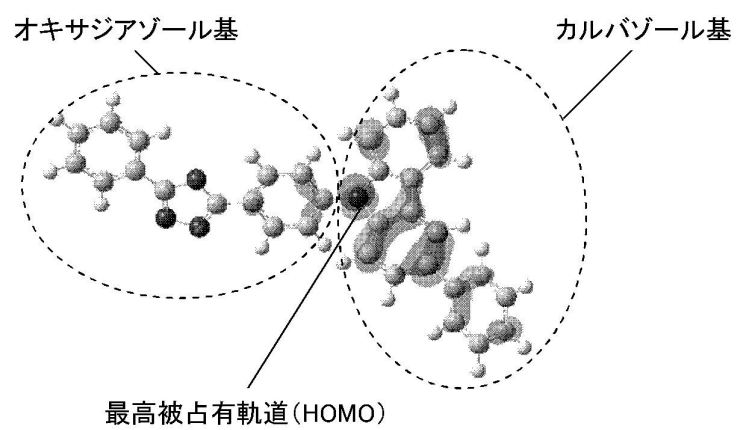


【図 2 9】

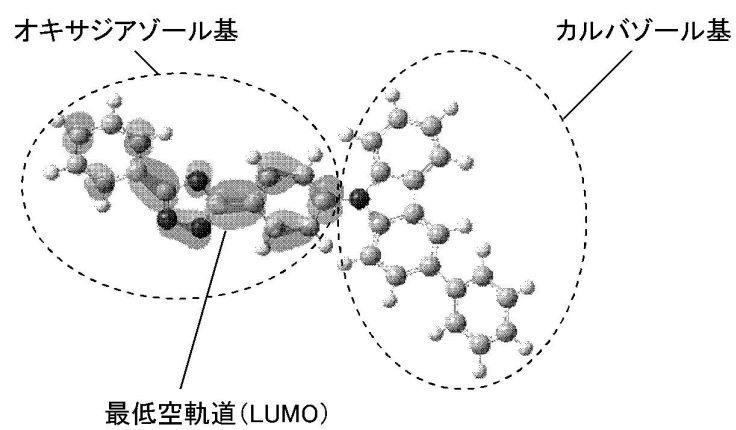


【図 30】

(A)

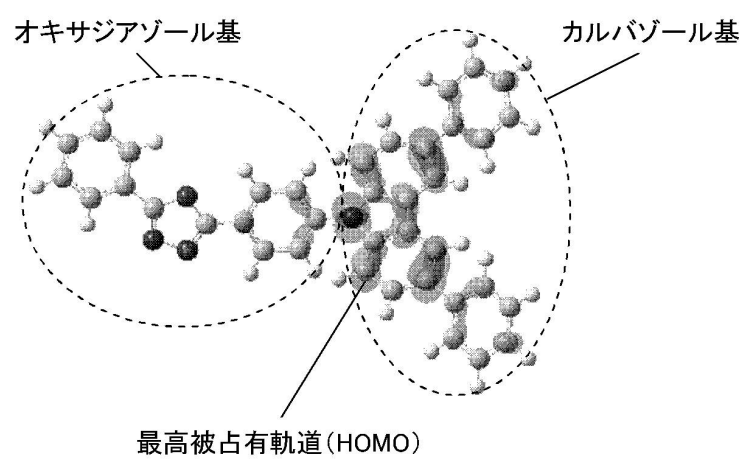


(B)

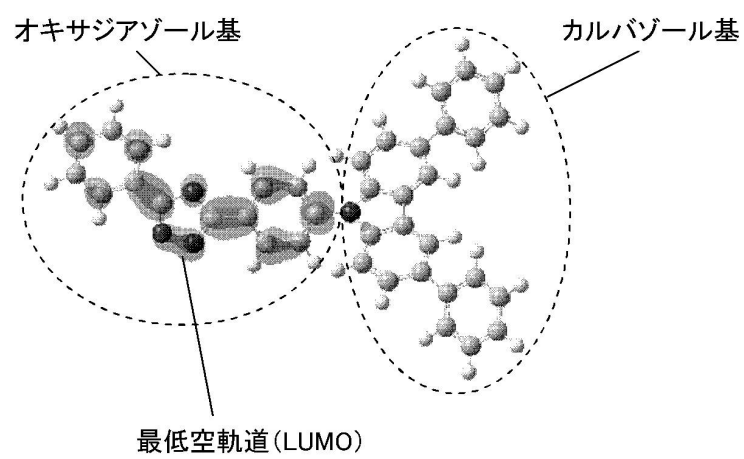


【図 3 1】

(A)



(B)



---

フロントページの続き

審査官 吉田 直裕

(56)参考文献 中国特許出願公開第1854136(CN, A)

特開2010-086952(JP, A)

特開2008-160098(JP, A)

特開2007-287676(JP, A)

特開2004-220931(JP, A)

特開2001-093670(JP, A)

特開2008-260765(JP, A)

中国特許出願公開第1919842(CN, A)

特開2008-308490(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 401/00 - 421/14

CAplus/REGISTRY(STN)