

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2014-209603

(P2014-209603A)

(43) 公開日 平成26年11月6日(2014.11.6)

| (51) Int.Cl.                         | F I              | テーマコード (参考) |
|--------------------------------------|------------------|-------------|
| <b>H01L 51/50 (2006.01)</b>          | H05B 33/14 B     | 3K107       |
| <b>C07C 13/72 (2006.01)</b>          | H05B 33/22 B     | 4C204       |
| <b>C09K 11/06 (2006.01)</b>          | H05B 33/22 D     | 4H006       |
| <b>C07D 241/38 (2006.01)</b>         | C07C 13/72 C S P |             |
| <b>C07D 209/82 (2006.01)</b>         | C09K 11/06 6 6 0 |             |
| 審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 62 頁) 最終頁に続く |                  |             |

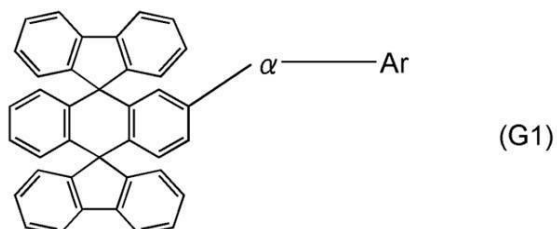
|              |                            |          |                                            |
|--------------|----------------------------|----------|--------------------------------------------|
| (21) 出願番号    | 特願2014-59820 (P2014-59820) | (71) 出願人 | 000153878                                  |
| (22) 出願日     | 平成26年3月24日 (2014. 3. 24)   |          | 株式会社半導体エネルギー研究所                            |
| (31) 優先権主張番号 | 特願2013-69849 (P2013-69849) |          | 神奈川県厚木市長谷398番地                             |
| (32) 優先日     | 平成25年3月28日 (2013. 3. 28)   | (72) 発明者 | 鈴木 将人                                      |
| (33) 優先権主張国  | 日本国 (JP)                   |          | 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内            |
|              |                            | (72) 発明者 | 大澤 信晴                                      |
|              |                            |          | 栃木県栃木市都賀町升塚161-2 アドバンスト フィルム デバイス インク株式会社内 |
|              |                            | (72) 発明者 | 下垣 智子                                      |
|              |                            |          | 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内            |
|              |                            | 最終頁に続く   |                                            |

(54) 【発明の名称】 アントラセン化合物、発光素子、発光装置、電子機器および照明装置

## (57) 【要約】

【課題】  $T_1$  準位の大きな有機化合物を提供する。また、青色から緑色の燐光の発光素子を提供する。また、ガラス転移温度の高い有機化合物を提供する。また、耐熱性の高い発光素子、発光装置、電子機器、または照明装置を提供する。

【解決手段】 陽極と、陰極の間に、少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物を、発光層、正孔輸送層および電子輸送層の少なくとも一に混合して用いる発光素子。



【選択図】 なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

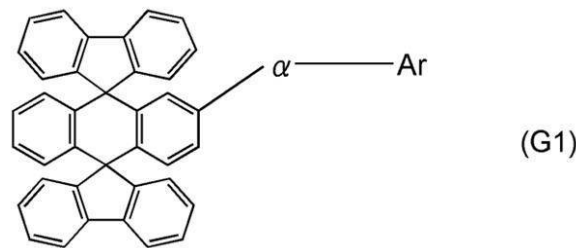
陽極と、陰極の間に、

少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、

前記発光層は、下記一般式（G1）で表されるアントラセン化合物と、燐光を発する化合物と、を有し、

前記正孔輸送層および前記電子輸送層の少なくとも一は、下記一般式（G1）で表されるアントラセン化合物を有する発光素子。

## 【化 1】



10

但し、式中、αは、置換または無置換のm-フェニレン基または置換または無置換の3,3'-ビフェニルジイル基を表し、Arは、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルbazolリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジリル基、置換または無置換のピリミジリル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかを表す。また、前記Arに置換基が結合している場合、前記置換基はフェニル基、ビフェニル基または炭素数1から6のアルキル基を表す。

20

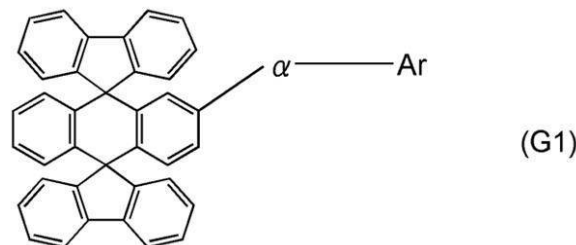
## 【請求項 2】

陽極と、陰極の間に、

少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、

前記電子輸送層は、下記一般式（G1）で表されるアントラセン化合物と、電子輸送性の化合物と、を有する発光素子。

## 【化 2】



30

40

但し、式中、αは、置換または無置換のm-フェニレン基または置換または無置換の3,3'-ビフェニルジイル基を表し、Arは、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルbazolリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジリル基、置換または無置換のピリミジリル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかを表す。また、前記Arに置換基が結合している場合、前記置換基はフェニル基、ビフェニル基また

50

は炭素数 1 から 6 のアルキル基を表す。

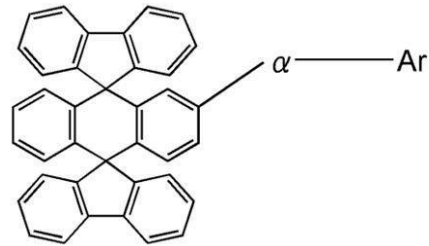
【請求項 3】

陽極と、陰極の間に、

少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、

前記正孔輸送層は、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物と、正孔輸送性の化合物と、を有する発光素子。

【化 3】



10

但し、式中、αは、置換または無置換のm-フェニレン基または置換または無置換の3,3'-ビフェニルジイル基を表し、Arは、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルバゾリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジル基、置換または無置換のピリミジル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかを表す。また、前記Arに置換基が結合している場合、前記置換基はフェニル基、ビフェニル基または炭素数 1 から 6 のアルキル基を表す。

20

【請求項 4】

陽極と、陰極の間に、

少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、

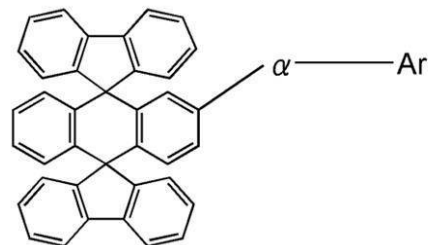
前記発光層は、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物と、燐光を発する化合物と、を有し、

30

前記正孔輸送層は、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物と、正孔輸送性の有機化合物と、を有し、

前記電子輸送層は、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物と、電子輸送性の有機化合物と、を有する発光素子。

【化 4】



(G1)

40

但し、式中、αは、置換または無置換のm-フェニレン基または置換または無置換の3,3'-ビフェニルジイル基を表し、Arは、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルバゾリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジル基、置換または無置換のピリミジル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換の

50

ベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかを表す。また、前記 Ar に置換基が結合している場合、前記置換基はフェニル基、ビフェニル基または炭素数 1 から 6 のアルキル基を表す。

【請求項 5】

陽極と、陰極の間に、

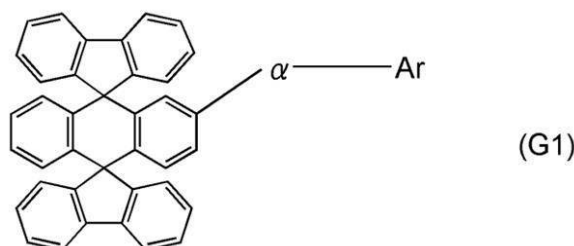
少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、

前記発光層は、電子輸送性の有機化合物または正孔輸送性の有機化合物と、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物と、燐光を発する化合物と、を有し、

前記正孔輸送層は、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物と、正孔輸送性の有機化合物と、を有し、

前記電子輸送層は、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物と、電子輸送性の有機化合物と、を有する発光素子。

【化 5】



但し、式中、 $\alpha$  は、置換または無置換の m-フェニレン基または置換または無置換の 3,3'-ビフェニルジイル基を表し、Ar は、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルバゾリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジル基、置換または無置換のピリミジル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかを表す。また、前記 Ar に置換基が結合している場合、前記置換基はフェニル基、ビフェニル基または炭素数 1 から 6 のアルキル基を表す。

【請求項 6】

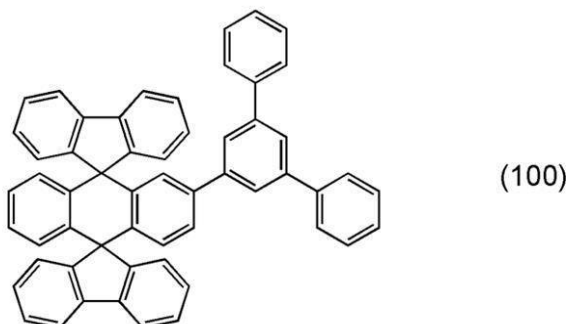
請求項 1 乃至請求項 5 に記載の発光素子において、

燐光の発光波長のピークが 570 nm 以下である発光素子。

【請求項 7】

構造式 (100) で表される化合物。

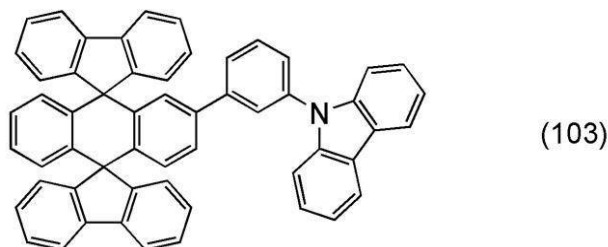
【化 6】



【請求項 8】

構造式 (103) で表される化合物。

【化 7】

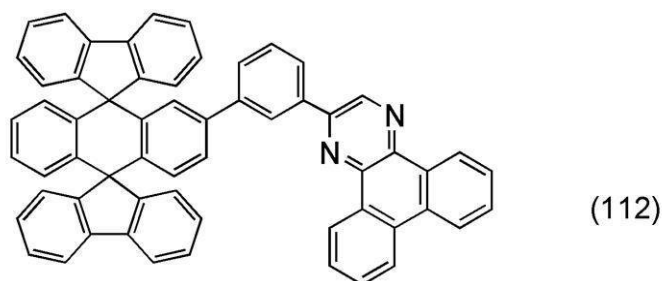


【請求項 9】

構造式 (112) で表される化合物。

10

【化 8】



20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、アントラセン化合物、および該アントラセン化合物を発光物質として用いた発光素子に関する。また該発光素子を用いた発光装置、電子機器および照明装置に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、エレクトロルミネッセンス (EL: 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 (特許文献 1、特許文献 2)。これら発光素子の基本的な構成は、一対の電極間に発光物質を含む層 (発光層) を挟んだものである。この素子に電圧を印加することにより、発光物質からの発光を得ることができる。

30

【0003】

このような発光素子は自発光型であるため、当該発光素子を用いたディスプレイ (表示装置) は、液晶ディスプレイに比べ視認性が高いこと、バックライトが不要であること、等の利点がある。また、このような発光素子を用いたディスプレイは、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】

これらの発光素子は発光層を膜状に形成することが可能であるため、面状に発光を得ることができる。このことは、白熱電球や LED に代表される点光源、あるいは蛍光灯に代表される線光源では得難い特色であるため、照明等に応用できる面光源としての利用価値も高い。

40

【0005】

発光物質に有機化合物を用い、一対の電極間に当該発光物質を含む発光層を設けた有機 EL 素子の場合、一対の電極間に電圧を印加することにより、陰極から電子が、陽極から正孔 (ホール) がそれぞれ発光層に注入され、電流が流れる。そして、注入された電子及び正孔が再結合することによって発光性の有機化合物が励起状態となり、励起された発光性の有機化合物から発光を得ることができる。

【0006】

発光層に電子及び正孔を効率よく注入するため、陰極と陽極の間に、電子および正孔の注入層および輸送層を設けた構成の有機 EL 素子が知られている。このような有機 EL 素子

50

では一般的に、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、陰極の順に積層されている。

【0007】

また発光層について、発光効率の高い微量のドーパント材料が、ホスト材料中に分散している構成とすることで、発光効率を向上できることも知られている。この構成の発光層では、まずホスト材料において電子及び正孔が再結合することによってホスト材料が励起状態となる。次にこの励起エネルギーがドーパント材料に移動してドーパント材料が励起状態となり、ドーパント材料からの発光を得ることができる。このようなエネルギー移動機構を経ることで、発光素子の発光効率を向上させることができる。

【0008】

また、有機化合物が形成する励起状態の種類としては、一重項励起状態と三重項励起状態があり、一重項励起状態 ( $S_1$ ) からの発光が蛍光、三重項励起状態 ( $T_1$ ) 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、 $S_1 : T_1 = 1 : 3$  であると考えられている。そのため、三重項励起状態を発光に変換することが可能な燐光性化合物を用いた発光素子の開発が近年盛んに行われている。

【0009】

燐光性化合物を用いた発光素子の中でも特に、青色から緑色の発光をする素子の要求が高い。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0010】

【特許文献1】米国特許第6984462号明細書

【特許文献2】中国特許出願公開第1338499号明細書

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

燐光素子において、発光層のホスト材料は、該燐光性ドーパント材料より三重項励起状態 ( $T_1$ ) 準位のエネルギーが大きい化合物を用いる必要がある。そのため、青色から緑色の発光素子に用いるホスト材料は、それより長波長発光素子で用いるホスト材料と比較して、 $T_1$  準位が相当高い必要がある。

【0012】

また、発光素子の長寿命化のためには、耐熱性の高い発光素子であることが好ましい。発光素子の耐熱性を向上させるためには、ガラス転移温度 ( $T_g$ ) の高い化合物を用いればよい。

【0013】

そこで、本発明の一態様では、 $T_1$  準位の大きなアントラセン化合物を提供することを目的の一とする。また、青色から緑色の燐光の発光素子を提供することを目的の一とする。また、ガラス転移温度の高いアントラセン化合物を提供することを目的の一とする。また、耐熱性の高い発光素子、発光装置、電子機器、または照明装置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】

【0014】

本発明の一態様は、陽極と、陰極の間に、少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、発光層は、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物と、燐光を発する化合物と、を有し、正孔輸送層および電子輸送層の少なくとも一は、下記一般式 (G1) で表されるアントラセン化合物を有する発光素子である。

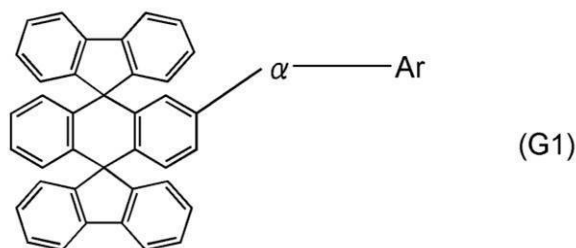
10

20

30

40

## 【化 1】



## 【0015】

10

但し、式中、 $\alpha$ は、置換または無置換のm-フェニレン基または置換または無置換の3,3'-ビフェニルジイル基を表し、Arは、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルバゾリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジル基、置換または無置換のピリミジル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかを表す。また、Arに置換基が結合している場合、置換基はフェニル基、ビフェニル基または炭素数1から6のアルキル基のいずれかを表す。

20

## 【0016】

また、本発明の別の一態様は、陽極と、陰極の間に、少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、電子輸送層は、上記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物と、電子輸送性の有機化合物と、を有する発光素子である。

## 【0017】

また、本発明の別の一態様は、陽極と、陰極の間に、少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、正孔輸送層は、上記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物と、正孔輸送性の有機化合物と、を有する発光素子である。

## 【0018】

また、本発明の別の一態様は、陽極と、陰極の間に、少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、発光層は、上記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物と、燐光を発する化合物と、を有し、正孔輸送層は、上記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物と、正孔輸送性の有機化合物と、を有し、電子輸送層は、上記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物と、電子輸送性の有機化合物と、を有する発光素子である。

30

## 【0019】

また、本発明の別の一態様は、陽極と、陰極の間に、少なくとも正孔輸送層、発光層および電子輸送層を有し、発光層は、電子輸送性の化合物または正孔輸送性の化合物と、上記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物と、燐光を発する化合物と、を有し、正孔輸送層は、上記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物と、正孔輸送性の有機化合物と、を有し、電子輸送層は、上記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物と、電子輸送性の有機化合物と、を有する発光素子である。

40

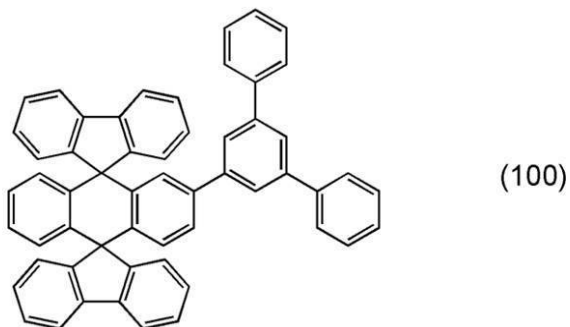
## 【0020】

また、上記において、燐光の最も短波長側のピークを570nm以下とすることができる。

## 【0021】

また、本発明の別の一態様は、下記構造式(100)で表される化合物である。

【化 2】

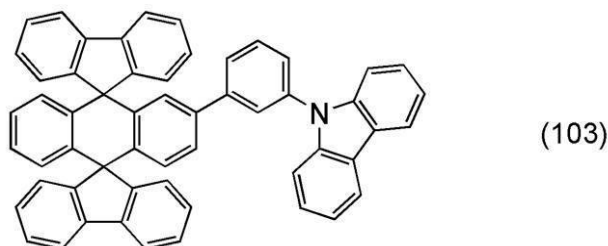


10

【0022】

また、本発明の別の一態様は、下記構造式（103）で表される化合物である。

【化 3】

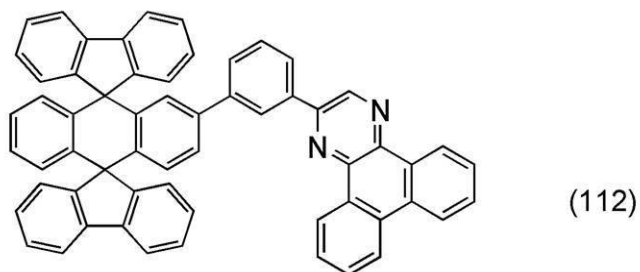


20

【0023】

また、本発明の別の一態様は、下記構造式（112）で表される化合物である。

【化 4】



30

【発明の効果】

【0024】

本発明の一態様により、 $T_1$  準位の大きな化合物を提供することができる。また、青色から緑色の燐光の発光素子を提供することができる。また、ガラス転移温度（ $T_g$ ）の高い化合物を提供することができる。また、耐熱性の高い発光素子、発光装置、電子機器、または照明装置を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0025】

【図 1】 本発明の一態様の発光素子の例を示す図。

40

【図 2】 本発明の一態様の発光素子の例を示す図。

【図 3】 本発明の一態様の発光素子の例を示す図。

【図 4】 本発明の一態様の発光素子の例を示す図。

【図 5】 電子機器の例を示す図。

【図 6】 照明装置の例を示す図。

【図 7】 実施例の発光素子を説明する図。

【図 8】 構造式（100）に示すアントラセン化合物（2mTPDfha）の  $^1\text{H}$  NMR チャート。

【図 9】 構造式（100）に示すアントラセン化合物（2mTPDfha）の LC/MS 分析結果。

50

【図 10】構造式 (103) に示すアントラセン化合物 (2mCzPDfha) の  $^1\text{H}$  NMR チャート。

【図 11】構造式 (103) に示すアントラセン化合物 (2mCzPDfha) の LC/MS 分析結果。

【図 12】実施例 4 で作製した発光素子 1 の電流密度－輝度特性。

【図 13】実施例 4 で作製した発光素子 1 の電圧－輝度特性。

【図 14】実施例 4 で作製した発光素子 1 の輝度－電流効率特性。

【図 15】実施例 4 で作製した発光素子 1 の電圧－電流特性。

【図 16】実施例 4 で作製した発光素子 1 の輝度－色度特性。

【図 17】実施例 5 で作製した発光素子 2 の電流密度－輝度特性。

10

【図 18】実施例 5 で作製した発光素子 2 の電圧－輝度特性。

【図 19】実施例 5 で作製した発光素子 2 の電圧－電流特性。

【図 20】実施例 5 で作製した発光素子 2 の輝度－色度特性。

【図 21】実施例 5 で作製した発光素子 2 の発光スペクトル。

【図 22】実施例 6 で作製した発光素子 3 の電流密度－輝度特性。

【図 23】実施例 6 で作製した発光素子 3 の電圧－輝度特性。

【図 24】実施例 6 で作製した発光素子 3 の輝度－電流効率特性。

【図 25】実施例 6 で作製した発光素子 3 の電圧－電流特性。

【図 26】実施例 6 で作製した発光素子 3 の輝度－色度特性。

【図 27】実施例 6 で作製した発光素子 3 の発光スペクトル。

20

【図 28】実施例 8 の計算結果を示す図。

【図 29】実施例 8 で作製した比較発光素子 1 および比較発光素子 2 の輝度－電流効率特性。

【図 30】実施例 8 で作製した比較発光素子 1 および比較発光素子 2 の電圧－電流特性。

【図 31】実施例 8 で作製した比較発光素子 1 および比較発光素子 2 の輝度－色度特性。

【図 32】実施例 8 で作製した比較発光素子 1 および比較発光素子 2 の発光スペクトル。

【図 33】実施例 8 で作製した比較発光素子 3 の電圧－電流特性。

【図 34】実施例 8 で作製した比較発光素子 3 の輝度－色度特性。

【図 35】実施例 8 で作製した比較発光素子 3 の発光スペクトル。

【図 36】実施例 5 で作製した発光素子 2 と、実施例 8 で作製した比較発光素子 3 の電圧－電流特性。

30

【図 37】構造式 (112) に示すアントラセン化合物 (2mDBqPDfha) の LC-MS 分析結果。

【発明を実施するための形態】

【0026】

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

【0027】

40

(実施の形態 1)

本実施の形態では、本発明の一態様である発光素子について図 1 乃至図 3 を用いて説明する。

【0028】

本発明の一態様の発光素子は、図 1 に示すように、陽極 101 と、陽極 101 上の正孔輸送層 103 と、正孔輸送層 103 上に設けられ正孔輸送層 103 と接する発光層 104 と、発光層 104 上に設けられ発光層 104 と接する電子輸送層 105 と、電子輸送層 105 上の陰極 102 と、を有する。陽極 101 と陰極 102 の間に、発光素子の閾値電圧より高い電圧を印加すると、少なくとも正孔輸送層 103、発光層 104、電子輸送層 105 を含む EL 層 106 に、陽極 101 側から正孔が注入され、陰極 102 側から電子が注

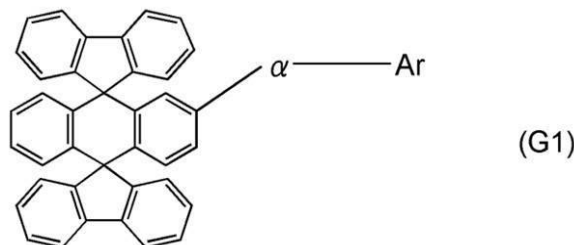
50

入される。注入された電子と正孔はE L層106において再結合し、E L層106に含まれる発光物質が発光する。

#### 【0029】

本発明の一態様の発光素子は、陽極101と、陰極102の間に、少なくとも正孔輸送層103、発光層104および電子輸送層105を有し、下記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物を、発光層104、正孔輸送層103および電子輸送層105の少なくとも一に混合して用いる発光素子である。

#### 【化5】



10

#### 【0030】

但し、式中、 $\alpha$ は、*m*-フェニレン基または3,3'-ビフェニルジイル基を表し、Arは、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルバゾリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジル基、置換または無置換のピリミジル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかを表す。

20

#### 【0031】

また、Arに置換基が結合している場合、フェニル基、ビフェニル基または炭素数1から6のアルキル基を表す。これらの置換基を用いると、構造が立体的となるため、これを含む膜は結晶化が起こりにくく、均一な膜質を得やすくなり好ましい。また上記置換基にアリール基を用いた場合、耐熱性が向上し、好ましい。また、ビフェニル基はメタビフェニル基やオルトビフェニル基である方が、パラビフェニル基であるよりも $T_1$ 準位が低くなりやすく、好ましい。また、上記置換基にアルキル基を用いた場合、有機溶剤への溶解性が向上し、好ましい。また、上記置換基にアルキル基を用いた場合、 $T_1$ 準位が低くなりやすく、好ましい。また、これら置換基を用いないほうが $T_1$ 準位が低くなりやすく、高く維持できるため、好ましい。

30

#### 【0032】

また、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物を青色の燐光ドーパントのホスト材料として用いる場合、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルバゾリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジル基、置換または無置換のピリミジル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基がより $T_1$ 準位が高い骨格のため、特に好ましい。また、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルバゾール-9-イル基がさらに $T_1$ 準位が高いため、より好ましい。

40

#### 【0033】

一般的に、分子量の大きい化合物は、ガラス転移点( $T_g$ )が高い。しかしながら、分子量の高い化合物は共役が広がりやすく、 $S_1$ 準位や $T_1$ 準位が低くなりやすい。しかしながら、上記一般式(G1)で表されるアントラセン化合物は、 $T_g$ が高いにもかかわらず分子量が大きく、 $S_1$ 準位や $T_1$ 準位が高い。 $T_g$ が高いのは、アントラセン骨格の平面に対して、アントラセン骨格の9,9'位に結合している2つのフルオレン骨格の平面が

50

約90°に直交して結合しているため、立体性が高いことに起因すると考えられる。そのため、結晶化しやすい材料に混合すると、膜質が向上し、好ましい。またS<sub>1</sub>準位やT<sub>1</sub>準位が高いのは、アントラセン骨格の9, 9'位の炭素がシグマ結合で結合しており、アントラセン骨格とそれに結合しているフルオレン骨格間の共役の広がりを抑えているためと考えられる。また、このシグマ結合によって、アントラセン骨格の2位に結合している置換基(α-Ar)も、この置換基からアントラセン骨格の2位を含むベンゼン骨格よりも先に共役が広がることを抑えられると考えられる。そのため、S<sub>1</sub>準位やT<sub>1</sub>準位が高く、HOMO(最高占有分子軌道(Highest Occupied Molecular Orbital))準位とLUMO(最低非占有分子軌道(Lowest Unoccupied Molecular Orbital))準位のギャップが大きい

10

#### 【0034】

一般式(G1)で表されるアントラセン化合物は、αが表すm-フェニレンを介してArが結合しているため、たとえばp-フェニレンを介して結合している場合よりも共役の広がりを抑えることができるため、T<sub>1</sub>準位が大きい。

#### 【0035】

そのため、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物は、可視光の中でも短波長である青色から緑色の燐光を発する発光素子の発光層104のホスト材料として好適に用いることができる。また一般式(G1)で表されるアントラセン化合物を発光層104、正孔輸送層103および電子輸送層105の少なくとも一に混合して用いることで、耐熱性の高い発光素子を実現できる。

20

#### 【0036】

また一般式(G1)で表されるアントラセン化合物は、発光層104、正孔輸送層103および電子輸送層105に含まれる他の化合物に混合して用いても好適に用いることができる。

#### 【0037】

たとえば図2(A)のように、正孔輸送層103が、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物201と、正孔輸送性の化合物203を有する構成としてもよい。この場合、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物の一般式中、Arは置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルbazolリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基のいずれかである方が、正孔輸送性が高く、好ましい。

30

#### 【0038】

また図2(B)のように、電子輸送層105が、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物201と、電子輸送性の化合物205を有する構成としてもよい。この場合、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物の一般式中、Arは、置換または無置換のピリジル基、置換または無置換のピリミジル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかである方が、電子輸送性が高く、好ましい。

40

#### 【0039】

また図2(C)のように、発光層104が、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物201と、燐光を発する化合物204aを有し、正孔輸送層103が、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物201と、正孔輸送性の化合物203を有し、電子輸送層105が、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物201と、電子輸送性の化合物205を有する構成としてもよい。

#### 【0040】

50

また図2(D)のように、発光層104が、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物201と、燐光を発する化合物204aと、電子輸送性または正孔輸送性の化合物204bを有し、正孔輸送層103が、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物201と、正孔輸送性の化合物203を有し、電子輸送層105が、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物201と、電子輸送性の化合物205を有する構成としてもよい。

#### 【0041】

また、図3のように、陽極101と正孔輸送層103との間に正孔注入層107を有する構成としてもよい。また陰極102と電子輸送層105との間に電子注入層108を有する構成としてもよい。さらに、陰極102と電子注入層108の間に電荷発生層109を有する構成としてもよい。

10

#### 【0042】

正孔注入層107は、正孔輸送性の高い物質とアクセプター性物質を含む層であり、アクセプター性物質によって正孔輸送性の高い物質から電子が引き抜かれることにより正孔(ホール)が発生する。従って、正孔注入層107から正孔輸送層103を介して発光層104に正孔が注入される。一般式(G1)で表されるアントラセン化合物を正孔輸送性の高い物質として用いても良い。この場合、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物の一般式中、Arは置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルバゾリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基のいずれかである方が、正孔輸送性が高く、好ましい。

20

#### 【0043】

また、電荷発生層109は、正孔輸送性の高い物質とアクセプター性物質を含む層である。アクセプター性物質によって正孔輸送性の高い物質から電子が引き抜かれるため、引き抜かれた電子が、電子注入性を有する電子注入層108から電子輸送層105を介して発光層104に注入される。

#### 【0044】

一般式(G1)で表されるアントラセン化合物の具体例としては、構造式100から112に示されるアントラセン化合物を挙げることができる。ただし、本発明はこれらに限定されない。

30

#### 【0045】

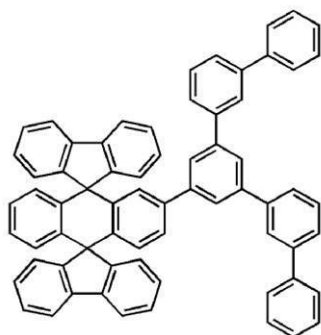


The chemical structure shows a phthalocyanine core, which consists of four benzene rings connected by four methylene groups in a macrocyclic arrangement. One of the benzene rings in the core is substituted with a 1,3,5-phenylene group, which is a benzene ring with three substituents at the 1, 3, and 5 positions. The substituents are a phenyl group, a 1,3,5-phenylene group, and a 1,3,5-phenylene group.



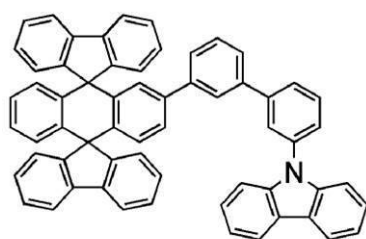
The chemical structure shows a phthalocyanine core, which is a macrocyclic compound consisting of four nitrogen atoms (represented by the four vertices of a square) and four benzene rings. Attached to one of the benzene rings of the core is a dendritic side chain. This side chain consists of a central benzene ring connected to three other benzene rings, which are further connected to three more benzene rings, forming a branched, tree-like structure.

10



The chemical structure of the acceptor molecule is shown. It consists of a central triphenylamine group (N atom bonded to three phenyl rings) where one phenyl ring is substituted with a fluorene moiety. The fluorene moiety is a tricyclic system consisting of a benzene ring fused to two five-membered rings, which are further fused to two more benzene rings.

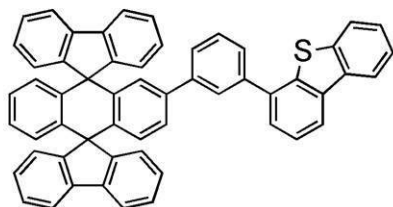
20



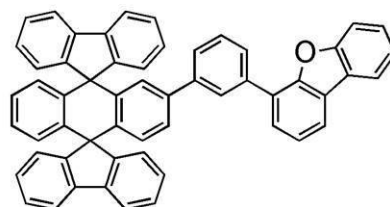
30

【 0 0 4 6 】

【化 7】

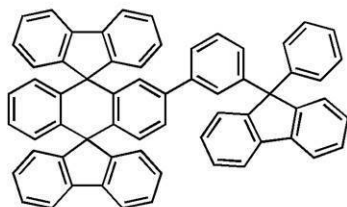


(106)

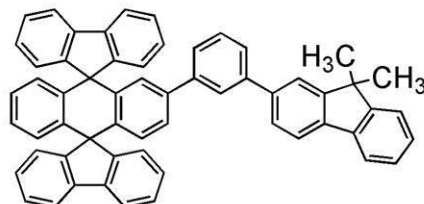


(107)

10

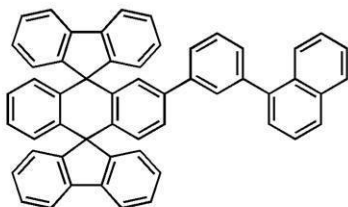


(108)

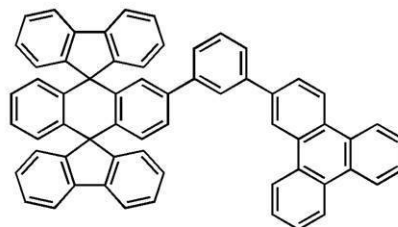


(109)

20

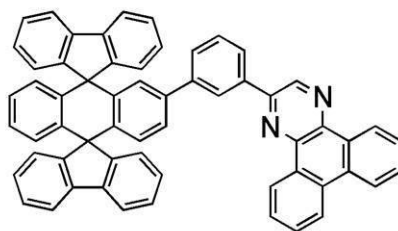


(110)



(111)

30



(112)

【 0 0 4 7 】

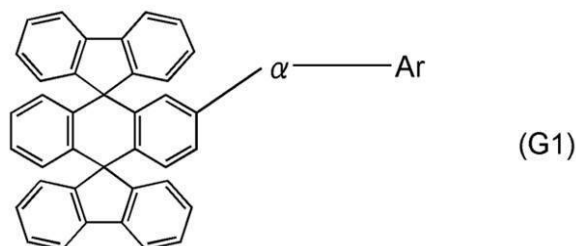
40

以下に、下記一般式（G 1）で表されるアントラセン化合物を合成する方法の一例を説明する。なお、下記一般式（G 1）で表されるアントラセン化合物の合成方法は、以下の合成方法に限定されない。

【 0 0 4 8 】

《一般式（G 1）で表されるアントラセン化合物の合成方法》

## 【化 8】



## 【0049】

但し、式中、 $\alpha$  は、*m*-フェニレン基または 3, 3'-ビフェニルジイル基を表し、Ar は、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルbazリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジル基、置換または無置換のピリミジル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかを表す。また、Ar に置換基が結合している場合、前記置換基はフェニル基、ビフェニル基または炭素数 1 から 6 のアルキル基を表す。

10

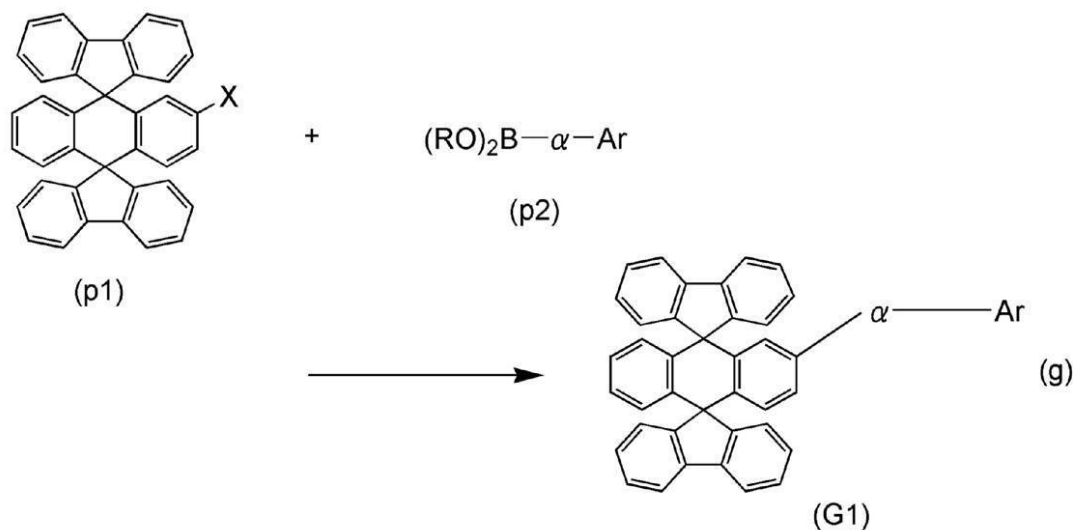
## 【0050】

以下に、一般式 (G 1) で表されるアントラセン化合物の合成スキーム (g) を示す。

20

## 【0051】

## 【化 9】



30

## 【0052】

なお、合成スキーム (g) において、 $\alpha$  は、*m*-フェニレン基または 3, 3'-ビフェニルジイル基を表し、Ar は、置換または無置換のフェニル基、置換または無置換のビフェニル基、置換または無置換のカルbazリル基、置換または無置換のジベンゾチオフェニル基、置換または無置換のジベンゾフラニル基、置換または無置換のトリフェニレニル基、置換または無置換のナフチル基、置換または無置換のフェナントレニル基、置換または無置換のフルオレニル基、置換または無置換のピリジル基、置換または無置換のピリミジル基、置換または無置換のジベンゾキノキサリニル基、置換または無置換のベンゾイミダゾリル基、置換または無置換のベンゾオキサゾリル基のいずれかを表す。また、Ar に置換基が結合している場合、前記置換基はフェニル基、ビフェニル基または炭素数 1 から 6 のアルキル基を表す。X はハロゲンを表し、臭素またはヨウ素であると反応性が高く、好ましい。R はアルキル基または水素を表す。

40

## 【0053】

上記合成スキーム (g) に示すように、ハロゲン化アントラセン (化合物 (p 1) ) と、

50

アリールホウ素化合物またはアリールボロン酸（化合物（p 2））を、鈴木・宮浦反応によりカップリングさせることで、一般式（G 1）で表されるアントラセン化合物を得ることができる。

【0054】

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

【0055】

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

10

【0056】

合成スキーム（g）において、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、炭酸ナトリウム等の無機塩基等が挙げられるが、用いることができる塩基はこれらに限られるものではない。

【0057】

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

20

【0058】

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

30

【0059】

また、合成スキーム（g）に示す鈴木・宮浦カップリング反応において、アントラセンのホウ素化合物又はアントラセンのボロン酸化合物と、ハロゲン化アリール化合物又はアリールトリフラート置換体を、鈴木・宮浦反応によりカップリングしてもよい。

【0060】

以上によって、一般式（G 1）で表されるアントラセン化合物を合成することができる。

【0061】

以下に本実施の形態に示す発光素子を作製する上での具体例について説明する。

【0062】

陽極101および陰極102には、金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることができる。具体的には、酸化インジウム－酸化スズ（Indium Tin Oxide）、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム－酸化スズ、酸化インジウム－酸化亜鉛（Indium Zinc Oxide）、酸化タングステン及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム、金（Au）、白金（Pt）、ニッケル（Ni）、タングステン（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）の他、元素周期表の第1族または第2族に属する元素、すなわちリチウム（Li）やセシウム（Cs）等のアルカリ金属、およびカルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）等のアルカリ土類金属、マグネシウム（Mg）、およびこれらを含む合金（MgAg、AlLi）、ユウロピウム（Eu

40

50

）、イッテルビウム（Yb）等の希土類金属およびこれらを含む合金、その他グラフェン等を用いることができる。なお、陽極101および陰極102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。

#### 【0063】

正孔注入層107、正孔輸送層103、および電荷発生層109に用いる正孔輸送性の高い物質として、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：NPBまたは $\alpha$ -NPD）やN,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン（略称：TPD）、4,4',4''-トリリス（カルバゾール-9-イル）トリフェニルアミン（略称：CTTA）、4,4',4''-トリリス（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''-トリリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン（略称：MTDATA）、4,4'-ビス[N-(スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：BSPB）などの芳香族アミン化合物、3-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCZPCA1）、3,6-ビス[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)-N-フェニルアミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCZPCA2）、3-[N-(1-ナフチル)-N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)アミノ]-9-フェニルカルバゾール（略称：PCZPCN1）等が挙げられる。その他、4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル（略称：CBP）、1,3,5-トリリス[4-(N-カルバゾリル)フェニル]ベンゼン（略称：TCPB）、9-[4-(10-フェニル-9-アントラセニル)フェニル]-9H-カルバゾール（略称：CZPA）等のカルバゾール化合物、等を用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質である。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。

#### 【0064】

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

#### 【0065】

なお、正孔輸送性の高い物質としては、一般式（G1）で表されるアントラセン化合物を用いることもできる。

#### 【0066】

また、正孔注入層107および電荷発生層109に用いるアクセプター性物質としては、遷移金属酸化物や元素周期表における第4族乃至第8族に属する金属の酸化物を挙げることができる。具体的には、酸化モリブデンが特に好ましい。

#### 【0067】

発光層104は、発光性の物質を含む層である。発光層104は、発光物質のみで構成されていても、ホスト材料中に発光中心物質が分散された状態で構成されていても良い。また、ホスト材料は2種以上を混合して用いてもよい。

#### 【0068】

発光層104において、発光物質、および発光中心物質として用いることが可能な材料には、特に限定は無く、これらの物質が発する光は、蛍光であっても燐光であっても良い。なお、上記発光物質および発光中心物質としては、例えば、以下のようなものが挙げられる。

#### 【0069】

蛍光を発する物質としては、公知の材料を用いることができる。また、一般式（G1）で

表されるアントラセン化合物を用いてもよい。

# 【0070】

燐光を発する物質としては、ビス〔2-（3', 5'-ビストリフルオロメチルフェニル）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>（accac）〕）、トリス（アセチルアセトナト）（モノフェナントロリン）テルビウム（III）（略称：Tb（accac）<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>（accac）〕）、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>（accac）〕）、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>（accac）〕）、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>（accac）〕）、ビス〔2-（2'-ベンゾ[4, 5-α]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>（accac）〕）、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>（accac）〕）、（アセチルアセトナト）ビス〔2, 3-ビス（4-フルオロフェニル）キノキサリナト〕イリジウム（III）（略称：〔Ir（Fdpq）<sub>2</sub>（accac）〕）、（アセチルアセトナト）ビス（2, 3, 5-トリフェニルピラジナト）イリジウム（III）（略称：〔Ir（tppr）<sub>2</sub>（accac）〕）、2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18-オクタエチル-21H, 23H-ポルフィリン白金（II）（略称：PtOEP）、トリス（1, 3-ジフェニル-1, 3-プロパンジオナト）（モノフェナントロリン）ユーロピウム（III）（略称：〔Eu（DBM）<sub>3</sub>（Phen）〕）、トリス〔1-（2-テノイル）-3, 3, 3-トリフルオロアセトナト〕（モノフェナントロリン）ユーロピウム（III）（略称：〔Eu（TTA）<sub>3</sub>（Phen）〕）などが挙げられる。

10

20

30

# 【0071】

また、上記ホスト材料に用いることが可能な材料としては、特に限定はないが、例えば、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム（III）（略称：Alq）、トリス（4-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム（III）（略称：Almq<sub>3</sub>）、ビス（10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト）ベリリウム（II）（略称：BeBq<sub>2</sub>）、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（4-フェニルフェノラト）アルミニウム（III）（略称：BA1q）、ビス（8-キノリノラト）亜鉛（II）（略称：Znq）、ビス〔2-（2-ベンゾオキサゾリル）フェノラト〕亜鉛（II）（略称：ZnPBO）、ビス〔2-（2-ベンゾチアゾリル）フェノラト〕亜鉛（II）（略称：ZnBTZ）などの金属錯体、2-（4-ビフェニル）-5-（4-tert-ブチルフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール（略称：PBD）、1, 3-ビス〔5-（p-tert-ブチルフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル〕ベンゼン（略称：OXD-7）、3-（4-ビフェニル）-4-フェニル-5-（4-tert-ブチルフェニル）-1, 2, 4-トリアゾール（略称：TAZ）、2, 2', 2''-（1, 3, 5-ベンゼントリイル）トリス（1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール）（略称：TPBI）、バソフェナントロリン（略称：BPhen）、バソキュプロイン（略称：BCP）、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：CO11）などの複素環化合物、4, 4'-ビス〔N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：NPBまたはα-NPD）、N, N'-ビス（3-メチルフェニル）-N, N'-ジフェニル-〔1, 1'-ビフェニル〕-4,

40

50

4'-ジアミン（略称：TPD）、4, 4'-ビス[N-（スピロ-9, 9'-ビフルオレン-2-イル）-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：BSPB）などの芳香族アミン化合物が挙げられる。また、アントラセン誘導体、フェナントレン誘導体、ピレン誘導体、クリセン誘導体、ジベンゾ[g, p]クリセン誘導体等の縮合多環芳香族化合物が挙げられ、具体的には、9, 10-ジフェニルアントラセン（略称：DPAnth）、N, N-ジフェニル-9-[4-（10-フェニル-9-アントリル）フェニル]-9H-カルバゾール-3-アミン（略称：CzAlPA）、4-（10-フェニル-9-アントリル）トリフェニルアミン（略称：DPhPA）、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：YGAPPA）、N, 9-ジフェニル-N-[4-（10-フェニル-9-アントリル）フェニル]-9H-カルバゾール-3-アミン（略称：PCAPPA）、N, 9-ジフェニル-N-{4-[4-（10-フェニル-9-アントリル）フェニル]フェニル}-9H-カルバゾール-3-アミン（略称：PCAPBA）、N, 9-ジフェニル-N-（9, 10-ジフェニル-2-アントリル）-9H-カルバゾール-3-アミン（略称：2PCAPPA）、6, 12-ジメトキシ-5, 11-ジフェニルクリセン、N, N, N', N', N'', N'', N'', N''-オクタフェニルジベンゾ[g, p]クリセン-2, 7, 10, 15-テトラアミン（略称：DBC1）、9-[4-（10-フェニル-9-アントリル）フェニル]-9H-カルバゾール（略称：CzPA）、3, 6-ジフェニル-9-[4-（10-フェニル-9-アントリル）フェニル]-9H-カルバゾール（略称：DPCzPA）、9, 10-ビス（3, 5-ジフェニルフェニル）アントラセン（略称：DPPA）、9, 10-ジ（2-ナフチル）アントラセン（略称：DNA）、2-tert-ブチル-9, 10-ジ（2-ナフチル）アントラセン（略称：t-BuDNA）、9, 9'-ビアントリル（略称：BANT）、9, 9'-（スチルベン-3, 3'-ジイル）ジフェナントレン（略称：DPNS）、9, 9'-（スチルベン-4, 4'-ジイル）ジフェナントレン（略称：DPNS2）、3, 3', 3''-（ベンゼン-1, 3, 5-トリイル）トリピレン（略称：TPB3）などを挙げることができる。これら及び公知の物質の中から、上記発光中心物質のエネルギーギャップより大きなエネルギーギャップを有する物質を、一種もしくは複数種選択して用いればよい。また、発光中心物質が燐光を発する物質である場合、ホスト材料としては、発光中心物質の三重項励起エネルギー（基底状態と三重項励起状態とのエネルギー差）よりも三重項励起エネルギーの大きい物質を選択すれば良い。

10

20

30

#### 【0072】

なお、上記ホスト材料に用いることが可能な材料としては、一般式（G1）で表されるアントラセン化合物を用いることもできる。一般式（G1）で表されるアントラセン化合物はT<sub>1</sub>準位が高いため、燐光を発する物質に対するホスト材料として用いる場合は、青から緑の発光を呈する発光素子とすることができる。

#### 【0073】

なお、発光層104は2層以上が積層された構成としてもよい。例えば、第1の発光層と第2の発光層を正孔輸送層側から順に積層して発光層104とする場合、第1の発光層のホスト材料として正孔輸送性を有する物質を用い、第2の発光層のホスト材料として電子輸送性を有する物質を用いる構成などがある。

40

#### 【0074】

電子輸送層105は、電子輸送性の高い物質を含む層である。電子輸送層105には、Alq<sub>3</sub>、トリス（4-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム（略称：Almq<sub>3</sub>）、ビス（10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト）ベリリウム（略称：BeBq<sub>2</sub>）、BAlq、Zn（BOX）<sub>2</sub>、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：Zn（BTZ）<sub>2</sub>）などの金属錯体を用いることができる。また、2-（4-ビフェニル）-5-（4-tert-ブチルフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール（略称：PBD）、1, 3-ビス[5-（p-tert-ブチルフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼン（略称：OXD-7）、3-（4-tert

50

t-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4-ビフェニル)-1,2,4-トリアゾール(略称:TAZ)、3-(4-t-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ビフェニル)-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:BPhen)、バソキュプロイン(略称: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:BZO)などの複素芳香族化合物も用いることができる。また、ポリ(2,5-ピリジンジイル)(略称:PPy)、ポリ[(9,9-ジヘキシルフルオレン-2,7-ジイル)-co-(ピリジン-3,5-ジイル)](略称:PF-PPy)、ポリ[(9,9-ジオクチルフルオレン-2,7-ジイル)-co-(2,2'-ビピリジン-6,6'-ジイル)](略称:PF-BPPy)のような高分子化合物を用いることもできる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質である。なお、正孔よりも電子の輸送性の高い物質であれば、上記以外の物質を電子輸送層として用いてもよい。

10

#### 【0075】

なお、電子輸送性の高い物質としては、一般式(G1)で表されるアントラセン化合物を用いることもできる。

#### 【0076】

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

#### 【0077】

電子注入層108は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入層108には、フッ化リチウム(LiF)、フッ化セシウム(CsF)、フッ化カルシウム(CaF<sub>2</sub>)、リチウム酸化物(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(ErF<sub>3</sub>)のような希土類金属化合物を用いることができる。また、上述した電子輸送層105を構成する物質を用いることもできる。

20

#### 【0078】

あるいは、電子注入層108に、有機化合物と電子供与体(ドナー)とを混合してなる複合材料を用いてもよい。このような複合材料は、電子供与体によって有機化合物に電子が発生するため、電子注入性および電子輸送性に優れている。この場合、有機化合物としては、発生した電子の輸送に優れた材料であることが好ましく、具体的には、例えば上述した電子輸送層105を構成する物質(金属錯体や複素芳香族化合物等)を用いることができる。電子供与体としては、有機化合物に対し電子供与性を示す物質であればよい。具体的には、アルカリ金属やアルカリ土類金属や希土類金属が好ましく、リチウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、エルビウム、イッテルビウム等が挙げられる。また、アルカリ金属酸化物やアルカリ土類金属酸化物が好ましく、リチウム酸化物、カルシウム酸化物、バリウム酸化物等が挙げられる。また、酸化マグネシウムのようなルイス塩基を用いることもできる。また、テトラチアフルバレン(略称:TF)等の有機化合物を用いることもできる。

30

#### 【0079】

なお、上述した正孔注入層107、正孔輸送層103、発光層104、電子輸送層105、電子注入層108、電荷発生層109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。

40

#### 【0080】

上述した発光素子は、陽極101および陰極102との間に生じた電位差により電流が流れ、EL層106において正孔と電子とが再結合することにより発光する。そして、この発光は、陽極101および陰極102のいずれか一方または両方を通して外部に取り出される。従って、陽極101および陰極102のいずれか一方、または両方が透光性を有する電極となる。

#### 【0081】

50

以上により説明した発光素子は、一般式（G 1）で表されるアントラセン化合物を、正孔輸送層 103、発光層 104 および電子輸送層 105 の少なくとも一に有するため、耐熱性の高い発光素子とすることができる。

#### 【0082】

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

10

#### 【0083】

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

#### 【0084】

なお、本発明の一態様であるアントラセン化合物は、有機薄膜太陽電池に用いることができる。より具体的には、キャリア輸送性があるため、キャリア輸送層、キャリア注入層に用いることができる。また、アクセプター性物質との混合膜を用いることで、電荷発生層として用いることができる。また、光励起するため、発電層として用いることができる。

20

#### 【0085】

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

#### 【0086】

（実施の形態 2）

本実施の形態では、本発明の一態様として、電荷発生層を挟んで EL 層を複数有する構造の発光素子（以下、タンデム型発光素子という）について図 4 を用いて説明する。

30

#### 【0087】

本実施の形態に示す発光素子は、図 4（A）に示すように一対の電極（第 1 の電極 301 および第 2 の電極 304）間に、複数の EL 層（第 1 の EL 層 302（1）、第 2 の EL 層 302（2））を有するタンデム型発光素子である。

#### 【0088】

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

40

#### 【0089】

また、複数の EL 層（第 1 の EL 層 302（1）、第 2 の EL 層 302（2））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 3

50

02 (1) に電子が注入され、第2のEL層302 (2) に正孔が注入される。

#### 【0090】

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

#### 【0091】

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

10

#### 【0092】

正孔輸送性の高い有機化合物に電子受容体が添加された構成とする場合において、正孔輸送性の高い有機化合物としては、例えば、NPBやTPD、TDATA、MTDATA、4, 4'-ビス[N-(スピロ-9, 9'-ビフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：BSPB）などの芳香族アミン化合物等を用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質である。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い有機化合物であれば、上記以外の物質を用いても構わない。なお、実施の形態1で示したアントラセン化合物を電荷発生層305における正孔輸送性の高い有機化合物として用いることもできる。

#### 【0093】

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

20

#### 【0094】

一方、電子輸送性の高い有機化合物に電子供与体が添加された構成とする場合において、電子輸送性の高い有機化合物としては、例えば、Alq、Almq<sub>3</sub>、BeBq<sub>2</sub>、BALqなど、キノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体等を用いることができる。また、この他、Zn(BOX)<sub>2</sub>、Zn(BTZ)<sub>2</sub>などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体なども用いることができる。さらに、金属錯体以外にも、PBDやOXD-7、TAZ、BPhen、BCPなども用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質である。なお、正孔よりも電子の輸送性の高い有機化合物であれば、上記以外の物質を用いても構わない。実施の形態1で示したアントラセン化合物を電子の輸送性の高い有機化合物として用いることもできる。

30

#### 【0095】

また、電子供与体としては、アルカリ金属またはアルカリ土類金属または希土類金属または元素周期表における第2、第13族に属する金属およびその酸化物、炭酸塩を用いることができる。具体的には、リチウム(Li)、セシウム(Cs)、マグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)、イッテルビウム(Yb)、インジウム(In)、酸化リチウム、炭酸セシウムなどを用いることが好ましい。また、テトラチアナフタセンのような有機化合物を電子供与体として用いてもよい。

40

#### 【0096】

なお、上述した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。

#### 【0097】

本実施の形態では、EL層を2層有する発光素子について説明したが、図4(B)に示す

50

ように、 $n$ 層（ただし、 $n$ は、3以上）のEL層を積層した発光素子についても、同様に適用することが可能である。本実施の形態に係る発光素子のように、一对の電極間に複数のEL層を有する場合、EL層とEL層との間に電荷発生層を配置することで、電流密度を低く保ったまま、高輝度領域での発光が可能である。電流密度を低く保てるため、長寿命素子を実現できる。また、照明を応用例とした場合は、電極材料の抵抗による電圧降下を小さくできるので、大面積での均一発光が可能となる。また、低電圧駆動が可能で消費電力が低い発光装置を実現することができる。

#### 【0098】

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

#### 【0099】

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

#### 【0100】

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

#### 【0101】

（実施の形態3）

本実施の形態では、本発明の一態様を適用した発光装置を用いた電子機器及び照明装置の一例について、図5及び図6を用いて説明する。

#### 【0102】

本実施の形態の電子機器は、表示部に本発明の一態様の発光装置を備える。また、本実施の形態の照明装置は、発光部（照明部）に本発明の一態様の発光装置を備える。本発明の一態様の発光装置を適用することで、消費電力の低い電子機器や照明装置を実現できる。

#### 【0103】

発光装置を適用した電子機器として、例えば、テレビジョン装置（テレビ、又はテレビジョン受信機ともいう）、コンピュータ用などのモニタ、デジタルカメラ、デジタルビデオカメラ、デジタルフォトフレーム、携帯電話機（携帯電話、携帯電話装置ともいう）、携帯型ゲーム機、携帯情報端末、音響再生装置、パチンコ機などの大型ゲーム機などが挙げられる。これらの電子機器及び照明装置の具体例を図5及び図6に示す。

#### 【0104】

図5（A）は、テレビジョン装置の一例を示している。テレビジョン装置7100は、筐体7101に表示部7102が組み込まれている。表示部7102では、映像を表示することが可能である。本発明の一態様を適用した発光装置は、表示部7102に用いることができる。また、ここでは、スタンド7103により筐体7101を支持した構成を示している。

#### 【0105】

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7111により行うことができる。リモコン操作機7111が備える操作キーにより、チャンネルや音量の操作を行うことができ、表示部7102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7111に、当該リモコン操作機7111から出力する情報を表示する表示部を設ける構成としてもよい。

#### 【0106】

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又は無線によ

10

20

30

40

50

る通信ネットワークに接続することにより、一方向（送信者から受信者）又は双方向（送信者と受信者間、あるいは受信者間同士など）の情報通信を行うことも可能である。

【0107】

図5（B）は、コンピュータの一例を示している。コンピュータ7200は、本体7201、筐体7202、表示部7203、キーボード7204、外部接続ポート7205、ポインティングデバイス7206等を含む。なお、コンピュータ7200は、本発明の一態様の発光装置をその表示部7203に用いることにより作製される。

【0108】

図5（C）は、携帯型ゲーム機の一例を示している。携帯型ゲーム機7300は、筐体7301a及び筐体7301bの二つの筐体で構成されており、連結部7302により、開閉可能に連結されている。筐体7301aには表示部7303aが組み込まれ、筐体7301bには表示部7303bが組み込まれている。また、図5（C）に示す携帯型ゲーム機は、スピーカ部7304、記録媒体挿入部7305、操作キー7306、接続端子7307、センサ7308（力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、光、液、磁気、温度、化学物質、音声、時間、硬度、電場、電流、電圧、電力、放射線、流量、湿度、傾度、振動、に於いて又は赤外線を測定する機能を含むもの）、LEDランプ、マイクロフォン等を備えている。もちろん、携帯型ゲーム機の構成は上述のものに限定されず、少なくとも表示部7303a、表示部7303bの両方、又は一方に本発明の一態様の発光装置を用いていればよく、その他付属設備が適宜設けられた構成とすることができる。図5（C）に示す携帯型ゲーム機は、記録媒体に記録されているプログラム又はデータを読み出して表示部に表示する機能や、他の携帯型ゲーム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5（C）に示す携帯型ゲーム機が有する機能はこれに限定されず、様々な機能を有することができる。

【0109】

図5（D）は、携帯電話機の一例を示している。携帯電話機7400は、筐体7401に組み込まれた表示部7402の他、操作ボタン7403、外部接続ポート7404、スピーカ7405、マイク7406などを備えている。なお、携帯電話機7400は、本発明の一態様の発光装置を表示部7402に用いることにより作製される。

【0110】

図5（D）に示す携帯電話機7400は、表示部7402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、電話を掛ける、或いはメールを作成するなどの操作は、表示部7402を指などで触れることにより行うことができる。

【0111】

表示部7402の画面は主として3つのモードがある。第1は、画像の表示を主とする表示モードであり、第2は、文字等の情報の入力を主とする入力モードである。第3は表示モードと入力モードの二つのモードが混合した表示＋入力モードである。

【0112】

例えば、電話を掛ける、或いはメールを作成する場合は、表示部7402を文字の入力を主とする文字入力モードとし、画面に表示させた文字の入力操作を行えばよい。

【0113】

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

【0114】

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

【0115】

また、入力モードにおいて、表示部7402の光センサで検出される信号を検知し、表示

部 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から表示モードに切り替えるように制御してもよい。

【0116】

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

【0117】

図 5 (E) は、二つ折り可能なタブレット型端末（開いた状態）の一例を示している。タブレット型端末 7 5 0 0 は、筐体 7 5 0 1 a、筐体 7 5 0 1 b、表示部 7 5 0 2 a、表示部 7 5 0 2 b を有する。筐体 7 5 0 1 a と筐体 7 5 0 1 b は、軸部 7 5 0 3 により接続されており、該軸部 7 5 0 3 を軸として開閉動作を行うことができる。また、筐体 7 5 0 1 a は、電源 7 5 0 4、操作キー 7 5 0 5、スピーカ 7 5 0 6 等を備えている。なお、タブレット型端末 7 5 0 0 は、本発明の一態様の発光装置を表示部 7 5 0 2 a、表示部 7 5 0 2 b の両方、又は一方に用いることにより作製される。

【0118】

表示部 7 5 0 2 a や表示部 7 5 0 2 b は、少なくとも一部をタッチパネルの領域とすることができ、表示された操作キーにふれることでデータ入力を行うことができる。例えば、表示部 7 5 0 2 a の全面にキーボードボタンを表示させてタッチパネルとし、表示部 7 5 0 2 b を表示画面として用いることができる。

【0119】

図 6 (A) に示す室内の照明装置 7 6 0 1、ロール型の照明装置 7 6 0 2、卓上照明装置 7 6 0 3、及び面状照明装置 7 6 0 4 は、それぞれ本発明の一態様の発光装置を用いた照明装置の一例である。本発明の一態様の発光装置は大面積化も可能であるため、大面積の照明装置として用いることができる。また、厚みが薄いため、壁に取り付けて使用することができる。

【0120】

図 6 (B) に示す卓上照明装置は、照明部 7 7 0 1、支柱 7 7 0 3、支持台 7 7 0 5 等を含む。照明部 7 7 0 1 には、本発明の一態様の発光装置が用いられている。本発明の一態様では、発光部が曲面を有する照明装置、又はフレキシブルに曲がる照明部を有する照明装置を実現することができる。このように、フレキシブルな発光装置を照明装置に用いることで、照明装置のデザインの自由度が向上するのみでなく、例えば、自動車の天井、ダッシュボード等の曲面を有する場所にも照明装置を設置することが可能となる。

【0121】

本実施の形態は、他の実施の形態と適宜組み合わせることができる。

【実施例 1】

【0122】

《合成例 1》

本実施例では、実施の形態 1 に記載のアントラセン化合物の一態様である、2'-（3,5-ジフェニル）フェニルジスピロ〔9H-フルオレン-9,9'-(10'H)-アントラセン-10',9''-(9H)フルオレン〕（略称：2mTPDfha）の合成例を具体的に例示する。なお、2mTPDfha（略称）の構造式（100）を以下に示す。

【0123】

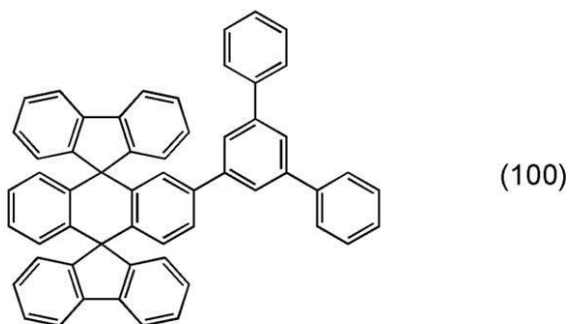
10

20

30

40

【化 10】



10

【0124】

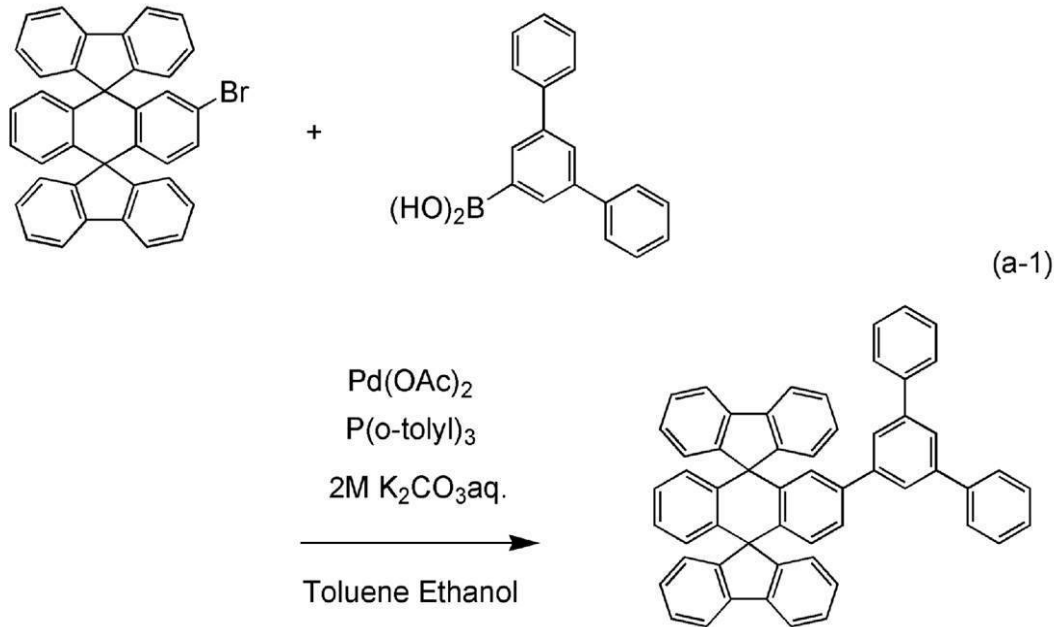
100ml三口フラスコに2'-ブロモジスピロ[9H-フルオレン-9,9'-(10'-H)-アントラセン-10',9''-(9H)フルオレン] (略称: 2BrDfha) 1.4g (2.4mmol)、(3,5-ジフェニルフェニル) ボロン酸0.80g (2.9mmol)、トリス(2-メチルフェニル) ホスフィン89mg (292μmol) を入れ窒素置換した。トルエン30mlとエタノール2.9mlと2M炭酸カリウム水溶液2.9ml (炭酸カリウム810mg) を加え、減圧下で撹拌することにより脱気した。酢酸パラジウム32mg (150μmol) を加え窒素気流下85℃で8時間撹拌した。トリス(2-メチルフェニル) ホスフィン89mg (290μmol)、酢酸パラジウム33mg (150μmol) を加え85℃で5時間撹拌した。(3,5-ジフェニルフェニル) ボロン酸200mg (730μmol)、トリス(2-メチルフェニル) ホスフィン270mg (880μmol) 酢酸パラジウム98mg (440μmol) を加え窒素気流下85℃で9.5時間撹拌した。所定時間撹拌後トルエンを加え珪藻土により濾過をした。得られた濾液に水を加え、トルエンにより抽出した。得られた有機層を飽和食塩水により洗浄し、硫酸マグネシウムを加えた。この混合物を自然濾過し、濾液を濃縮し黄色固体を得た。得られた黄色固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(トルエン、ヘキサン混合溶液から酢酸エチル、ヘキサン混合溶液へ勾配をかけた)により精製し、目的物が入ったフラクションと目的物に不純物が入ったフラクションを得た。目的物が入ったフラクションを濃縮し、ヘキサンとアセトンの混合溶液を加え超音波を照射し、吸引濾過し目的物の白色固体650mgを収率38%で得た。目的物に不純物が入ったフラクションを濃縮し、熱トルエン約40mlに溶解させ、ヘキサン約10mlを加えて再結晶を行い、白色固体を得た。得られた白色固体にヘキサンとアセトンの混合溶液を加え超音波を照射し、吸引濾過し目的物の白色固体390mgを収率22%で得た。得られた目的物は合わせて1.0g、収率は60%であった。この合成スキームを(a-1)に示す。

20

30

【0125】

## 【化 1 1】



10

## 【0126】

得られた物質の  $^1\text{H}$  NMR (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ) のデータを以下に示す。

$^1\text{H}$  NMR (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  (ppm) = 6.40–6.45 (m, 2H), 6.50 (d,  $J = 8.4$  Hz, 1H), 6.65 (d,  $J = 1.8$  Hz, 1H), 6.77–6.82 (m, 2H), 7.08 (dd,  $J = 1.8$  Hz, 8.3 Hz, 1H), 7.25–7.50 (m, 24H), 7.60 (t,  $J = 1.5$  Hz, 1H), 7.90–7.96 (m, 4H)

20

## 【0127】

得られた物質の  $^1\text{H}$  NMR (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ) のデータを、図 8 (A) および (B) に示す。図 8 (B) は図 8 (A) における 6 ppm から 9 ppm の範囲の拡大図である。

## 【0128】

次に、2'-(3,5-ジフェニル)フェニルジスピロ[9H-フルオレン-9,9'-(10'H)-アントラセン-10',9''-(9H)フルオレン] (略称: 2mTPDfha) のトルエン溶液の紫外可視吸収スペクトル (以下、単に「吸収スペクトル」という) 及び発光スペクトルを測定した。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計 ((株) 日本分光製 V550 型) を用い、トルエン溶液を石英セルに入れ、室温で測定を行った。また、発光スペクトルの測定には、蛍光光度計 ((株) 浜松ホトニクス製 FS920) を用い、脱気したトルエン溶液を石英セルに入れ、室温で測定を行った。また薄膜の場合には、石英基板に蒸着した薄膜を用い、吸収スペクトルを測定する場合には薄膜の吸収スペクトルから石英の吸収スペクトルを差し引いて得られる値を示す。

30

## 【0129】

2mTPDfha (略称) のトルエン溶液では、311 nm 付近に吸収ピークが見られ、2mTPDfha (略称) の薄膜では、312 nm 付近に吸収ピークが見られた。

40

## 【0130】

また、2mTPDfha (略称) のトルエン溶液では、最大発光波長が 350 nm (励起波長 270 nm) であった。2mTPDfha (略称) の薄膜では、最大発光波長が 353 nm (励起波長 312 nm) であった。

## 【0131】

これらの結果より、本発明の一態様の 2mTPDfha (略称) は、 $S_1$  準位が高く、紫外蛍光を発することが分かった。

## 【0132】

50

次に、2 m T P D f h a（略称）について、サイクリックボルタンメトリ（C V）測定を行った。C V測定には、電気化学アナライザー（ビー・エー・エス（株）製、型番：A L Sモデル600 Aまたは600 C）を用いた。

#### 【0133】

また、C V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>NC l O<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、さらに測定対象を2 mmol / Lの濃度となるように溶解させて調製した。また、作用電極としては白金電極（ビー・エー・エス（株）製、P T E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、V C - 3用P t カウンター電極（5 cm））を、参照電極としてはA g / A g<sup>+</sup>電極（ビー・エー・エス（株）製、R E 7非水溶媒系参照電極）をそれぞれ用いた。また、測定は室温（20℃以上、25℃以下）とし、測定時のスキャン速度は、0.1 V / s e cに統一した。なお、本実施例では、参照電極の真空準位に対するポテンシャルエネルギーを、-4.94 e Vであるとした。

10

#### 【0134】

続いて、2 m T P D f h a（略称）のC V測定からのL U M O準位を算出した。還元ピーク電位（中性側から還元間）E<sub>p a</sub> [V]と、酸化ピーク電位（還元側から中性間）E<sub>p c</sub> [V]から、半波電位（E<sub>p a</sub>とE<sub>p c</sub>の中間の電位）は（E<sub>p a</sub> + E<sub>p c</sub>） / 2 [V]（=-2.75 e V）と算出した。続けて、参照電極の真空準位に対するポテンシャルエネルギー-4.94 e Vから、この半波電位-2.75 e Vを差し引き、-2.20 e VをL U M O準位（還元電位）とした。

20

#### 【0135】

これらの結果より、本発明の一態様の2 m T P D f h a（略称）は、比較的浅いL U M O準位を持つことが分かった。

#### 【0136】

次に、2 m T P D f h a（略称）を液体クロマトグラフ質量分析（L i q u i d C h r o m a t o g r a p h y M a s s S p e c t r o m e t r y（略称：L C / M S分析））によって質量（M S）分析した。

#### 【0137】

L C / M S分析は、ウォータース社製A c q u i t y U P L C、及びウォータース社製X e v o G 2 T o f M Sを用いて行った。L C分離で用いたカラムはA c q u i t y U P L C B E H C 8（2.1×100 mm 1.7 μm）、カラム温度は40℃とした。移動相は移動相Aをアセトニトリル、移動相Bを0.1体積%ギ酸水溶液とした。また、サンプルは任意の濃度の2 m T P D f h a（略称）をトルエンに溶解し、アセトニトリルで希釈して調整し、注入量は5.0 μLとした。

30

#### 【0138】

M S分析では、エレクトロスプレーイオン化法（E l e c t r o S p r a y I o n i z a t i o n（略称：E S I））によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は3.0 k V、サンプルコーン電圧は30 Vとし、検出はポジティブモードで行った。以上の条件でイオン化されたm / z = 709.29の成分を衝突室（コリジョンセル）内でアルゴンガスと衝突させてプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー（コリジョンエネルギー）は70 e Vとした。なお、測定する質量範囲はm / z = 100以上1200以下とした。図9（A）および（B）に、解離させたプロダクトイオンを飛行時間（T O F）型M Sで検出した結果を示す。図9（B）は、図9（A）の縦軸を拡大した図である。

40

#### 【0139】

図9の結果から、2 m T P D f h a（略称）は、主としてm / z = 403.15付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、図9に示す結果は、2 m T P D f h a（略称）に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる2 m

50

TPDfha（略称）を同定する上での重要なデータであるといえる。

【0140】

なお、 $m/z = 403.15$  付近のプロダクトイオンは、2mTPDfha（略称）におけるベンゼン骨格が離脱した状態（ $C_{32}H_{19}$ ）のラジカルカチオンと推定される。

【実施例2】

【0141】

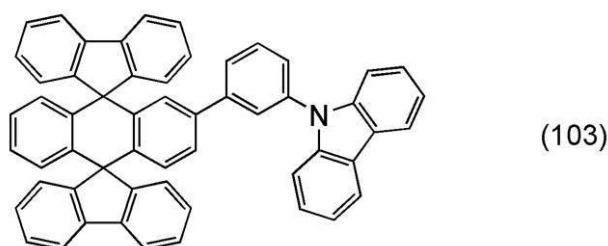
《合成例2》

本実施例では、実施の形態1に記載のアントラセン化合物の一つである、9-（3- {ジスピロ [9H-フルオレン-9, 9' (10'H)-アントラセン-10', 9'' (9H) フルオレン] 2'-イル} フェニル) -9H-カルバゾール（略称：2mCzPDfha）の合成例を具体的に例示する。なお、2mCzPDfha（略称）の構造式（103）を以下に示す。

10

【0142】

【化12】



20

【0143】

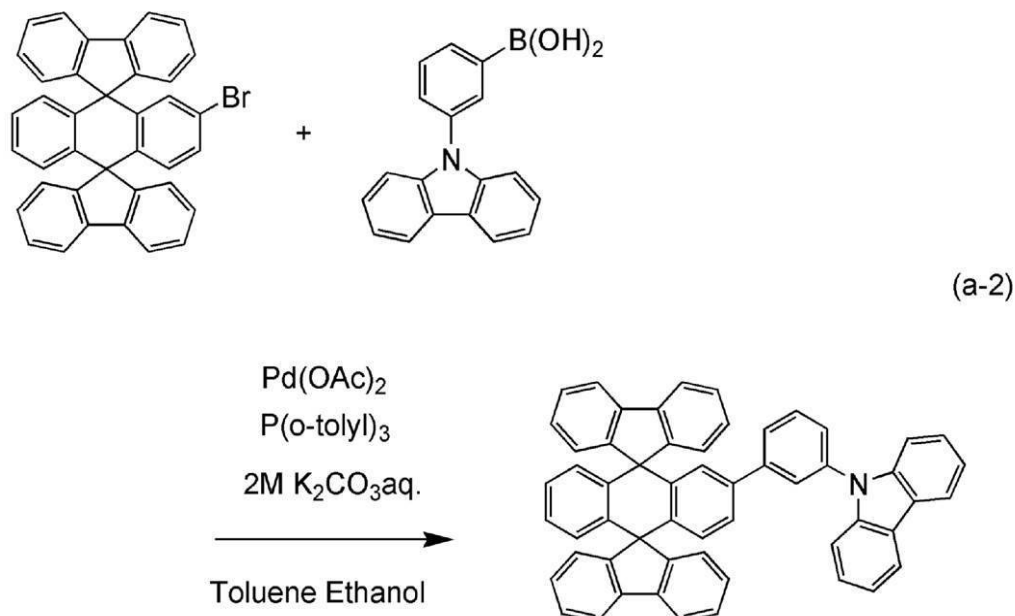
100ml三口フラスコに2'-ブロモジスピロ [9H-フルオレン-9, 9' (10'H)-アントラセン-10', 9'' (9H) フルオレン]（略称：2BrDfha）1.25g（2.23mmol）、3-（カルバゾール-9-イル）フェニル硼酸770mg（2.68mmol）、トリス（2-メチルフェニル）ホスフィン81.6mg（268μmol）を入れ窒素置換した。トルエン30ml、エタノール2.7ml、2M炭酸カリウム水溶液2.7ml（炭酸カリウム741mg）を加え、減圧下で攪拌することにより脱気した。酢酸パラジウム30.1mg（134μmol）を加え窒素気流下85℃で8時間攪拌した。トリス（2-メチルフェニル）ホスフィン81.6mg（268μmol）、酢酸パラジウム30.1mg（134μmol）を加え85℃で5時間攪拌した。ここに、3-（カルバゾール-9-イル）フェニル硼酸201mg（699μmol）、トリス（2-メチルフェニル）ホスフィン245mg（804μmol）、酢酸パラジウム90.3mg（402μmol）を加え窒素気流下85℃で9.5時間攪拌した。所定時間攪拌後トルエンを加え珪藻土により濾過をした。濾液に水を加え、これをトルエンにより抽出し、得られた有機層を飽和食塩水により洗浄し、硫酸マグネシウムを加えて水分を吸着させた。混合物を自然濾過し、濾液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン、トルエンとヘキサンの混合溶液、酢酸エチルとヘキサンの混合溶液）により精製し、白色固体を得た。白色固体にヘキサンとアセトンの混合溶液を加え超音波を照射し、生じた懸濁液を吸引濾過し、目的物の白色固体0.99gを収率61.4%で得た。この合成スキームを（a-2）に示す。

30

40

【0144】

## 【化 1 3】



10

## 【0145】

得られた物質の  $^1\text{H}$  NMR データを以下に示す。

20

$^1\text{H}$  NMR (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  (ppm) = 6.38–6.52 (m, 3H), 6.64–6.69 (m, 1H), 6.76–6.85 (m, 2H), 7.04 (dd,  $J=2.4\text{ Hz}$ ,  $8.4\text{ Hz}$ , 1H), 7.09–7.17 (m, 1H), 7.21–7.49 (m, 2H), 7.93 (d,  $J=7.2\text{ Hz}$ , 4H), 8.10 (d,  $J=7.8\text{ Hz}$ , 2H)。

## 【0146】

得られた物質の  $^1\text{H}$  NMR (300 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ) のデータを、図 10 (A) および (B) に示す。図 10 (B) は図 10 (A) における 6 ppm から 8.5 ppm の範囲の拡大図である。

## 【0147】

30

次に、9-(3-{ジスピロ[9H-フルオレン-9, 9'-(10'H)-アントラセン-10', 9''-(9H)フルオレン]2-イル}フェニル)-9H-カルバゾール (略称: 2mCzPDfha) のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを測定した。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計 ((株) 日本分光製 V550 型) を使い、トルエン溶液を石英セルに入れ、室温で測定を行った。また、発光スペクトルの測定には、蛍光光度計 ((株) 浜松ホトニクス製 FS920) を使い、脱気したトルエン溶液を石英セルに入れ、室温で測定を行った。また薄膜の場合には、石英基板に蒸着した薄膜を用い、吸収スペクトルを測定する場合には薄膜の吸収スペクトルから石英の吸収スペクトルを差し引いて得られる値を示す。

## 【0148】

40

2mCzPDfha (略称) のトルエン溶液では、341 nm 付近に吸収ピークが見られ、2mCzPDfha (略称) の薄膜では、343 nm 付近に吸収ピークが見られた。

## 【0149】

また、2mCzPDfha (略称) のトルエン溶液では、362 nm, 347 nm (励起波長 290 nm) に発光ピークが見られ、最大発光波長は 347 nm であった。2mCzPDfha (略称) の薄膜では、450 nm, 424 nm, 366 nm, 351 nm (励起波長 344 nm) に発光ピークが見られ、最大発光波長は 351 nm であった。

## 【0150】

これらの結果より、本発明の一態様の 2mCzPDfha (略称) は、 $S_1$  準位が高く、紫色蛍光を発することが分かった。

50

## 【0151】

次に、2mCzPDfha（略称）について、サイクリックボルタンメトリ（CV）測定を行った。CV測定には、電気化学アナライザー（ビー・エー・エス（株）製、型番：ALSモデル600Aまたは600C）を用いた。

## 【0152】

また、CV測定における溶液は、溶媒として脱水ジメチルホルムアミド（DMF）（（株）アルドリッチ製、99.8%、カタログ番号；22705-6）を用い、支持電解質である過塩素酸テトラ-n-ブチルアンモニウム（ $n\text{-Bu}_4\text{NClO}_4$ ）（（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2mmol/Lの濃度となるように溶解させて調製した。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。また、測定は室温（20℃以上25℃以下）とし、測定時のスキャン速度は、0.1V/secに統一した。なお、本実施例では、参照電極の真空準位に対するポテンシャルエネルギーを、-4.94eVであるとした。

10

## 【0153】

続いて、2mCzPDfha（略称）のCV測定からのLUMO準位を算出した。還元ピーク電位（中性側から還元間） $E_{pa}$  [V]と、酸化ピーク電位（還元側から中性間） $E_{pc}$  [V]から、半波電位（ $E_{pa}$ と $E_{pc}$ の中間の電位）は $(E_{pa} + E_{pc}) / 2$  [V]（=-2.78eV）と算出した。続けて、参照電極の真空準位に対するポテンシャルエネルギー-4.94eVから、この半波電位-2.78eVを差し引き、-2.16eVをLUMO準位（還元電位）とした。

20

## 【0154】

続いて、2mCzPDfha（略称）のCV測定からのHOMO準位を算出した。酸化側（0.2eV以上1.0eV以下）に走査し、-5.90eVをHOMO準位（酸化電位）とした。

## 【0155】

これらの結果より、本発明の一態様の2mCzPDfha（略称）は、比較的浅いLUMO準位と比較的深いHOMO準位とを持つことが分かった。

30

## 【0156】

次に、2mCzPDfha（略称）を液体クロマトグラフ質量分析（Liquid Chromatography Mass Spectrometry（略称：LC/MS分析））によって質量（MS）分析した。

## 【0157】

LC/MS分析は、ウォータース社製Acquity UPLC、及びウォータース社製Xevo G2 ToF MSを用いて行った。LC分離で用いたカラムはAcquity UPLC BEH C8（ $2.1 \times 100\text{mm}$  1.7 $\mu\text{m}$ ）、カラム温度は40℃とした。移動相は移動相Aをアセトニトリル、移動相Bを0.1体積%ギ酸水溶液とした。また、サンプルは任意の濃度の2mCzPDfha（略称）をトルエンに溶解し、アセトニトリルで希釈して調整し、注入量は5.0 $\mu\text{L}$ とした。

40

## 【0158】

MS分析では、エレクトロスプレーイオン化法（Electrospray Ionization（略称：ESI））によるイオン化を行った。この時のキャピラリー電圧は3.0kV、サンプルコーン電圧は30Vとし、検出はポジティブモードで行った。以上の条件でイオン化された $m/z = 722.29$ の成分を衝突室（コリジョンセル）内でアルゴンガスと衝突させてプロダクトイオンに解離させた。アルゴンを衝突させる際のエネルギー（コリジョンエネルギー）は50eVとした。なお、測定する質量範囲は $m/z = 100$ 以上1200以下とした。図11に、解離させたプロダクトイオンを飛行時間（TOF）型MSで検出した結果を示す。

50

## 【0159】

図11の結果から、2mCzPDfha（略称）は、主として $m/z = 556.12$ 付近および $m/z = 403.15$ 付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、図11に示す結果は、2mCzPDfha（略称）に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる2mCzPDfha（略称）を同定する上での重要なデータであるといえる。

## 【0160】

なお、 $m/z = 556.12$ 付近のプロダクトイオンは、2mCzPDfha（略称）におけるカルbazolil基が脱離した状態（ $C_{44}H_{28}$ ）のラジカルカチオンと推定され、2mCzPDfha（略称）がカルbazolil基を含んでいることを示唆するものである。

10

## 【0161】

また、 $m/z = 403.15$ 付近のプロダクトイオンは、2mCzPDfha（略称）におけるカルbazolil基および2つのベンゼン骨格が脱離した状態（ $C_{32}H_{19}$ ）のカチオンと推定される。

## 【実施例3】

## 【0162】

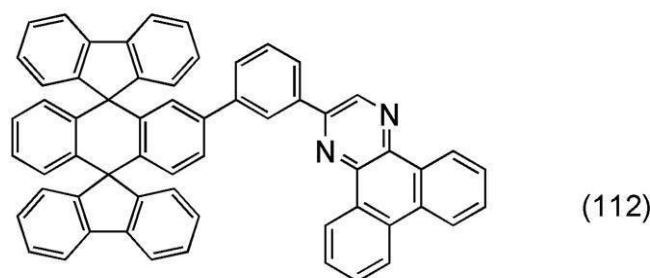
## 《合成例3》

本実施例では、実施の形態1に記載のアントラセン化合物の一つである、2-（3- {ジスピロ[9H-フルオレン-9, 9'-(10'H)-アントラセン-10', 9''-(9H)フルオレン]2'-イル}フェニル)ジベンゾ[f, h]キノキサリン（略称：2mDBqPDfha）の合成例を具体的に例示する。なお、2mDBqPDfha（略称）の構造式(112)を以下に示す。

20

## 【0163】

## 【化14】



(112)

30

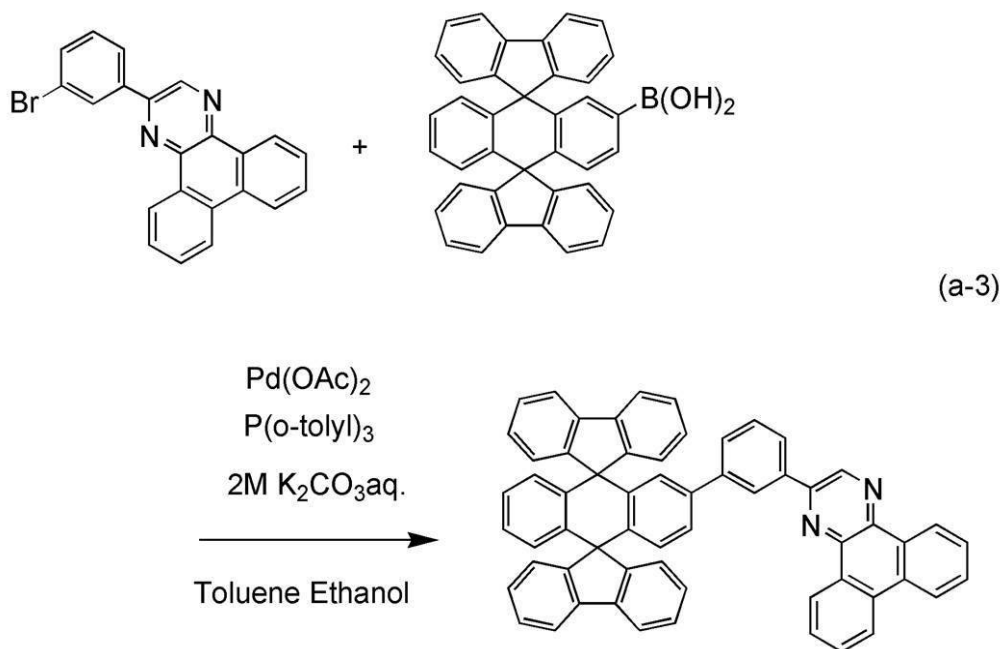
## 【0164】

100ml三口フラスコに、2-（3-ブロモフェニル）ジベンゾ[f, h]キノキサリン1.23g（3.20mmol）、ジスピロ[9H-フルオレン-9, 9'-(10'H)-アントラセン-10', 9''-(9H)フルオレン]-2'-ボロン酸1.85g（3.52mmol）、トリス（2-メチルフェニル）ホスフィン42.9mg（141μmol）を入れ窒素置換した。ここにトルエン35ml、エタノール3.5ml、2M炭酸カリウム水溶液3.52ml（7.04mmol）を加え脱気した。この混合液を、85℃25時間加熱撹拌を行い、この間酢酸パラジウム47.7mg（0.21mmol）を3回に分けて、トリス（2-メチルフェニル）ホスフィン85.8mg（0.28mmol）を2回に分けて加えた。反応終了後、ここにトルエンを加え、液量を350mlにして加熱した。ここに水を加えて撹拌し、吸引濾過により灰色固体を得た。得られた灰色固体にトルエン150mlを加えて加熱し、吸引濾過により灰色固体を得た。得られた灰色固体にトルエン100mlを加えて加熱し、吸引濾過により灰色固体を得た。得られた灰色固体にメタノールを加えて超音波を照射し懸濁させて吸引濾過し、目的物の灰色固体1.84gを収率73.3%で得た。この合成スキームを（a-3）に示す。

40

## 【0165】

【化 1 5】



10

20

【0166】

次に、2-(3-{ジスピロ[9H-フルオレン-9,9'-(10'H)-アントラセン-10',9''-(9H)フルオレン]2'-イル}フェニル)ジベンゾ[f,h]キノキサリン(略称:2mDBqPDfha)のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを測定した。測定法は実施例1と同様に行った。

【0167】

2mDBqPDfha(略称)のトルエン溶液では、376nm付近に吸収ピークが見られた。

【0168】

また、2mDBqPDfha(略称)のトルエン溶液では、408nm、487nm(励起波長311nm)に発光ピークが見られ、最大発光波長は408nmであった。

30

【0169】

これらの結果より、本発明の一態様の2mDBqPDfha(略称)は、 $S_1$ 準位が高く、紫色蛍光を発することが分かった。

【0170】

また、2mDBqPDfha(略称)のりん光スペクトルの測定を低温PL法により行った。測定には、顕微PL装置 LabRAM HR-PL((株)堀場製作所)を用い、測定温度は10K、励起光としてHe-Cdレーザー(325nm)を用い、検出器にはCCD検出器を用いた。なお、2mDBqPDfha(略称)薄膜を石英基板上に厚さ30nmで成膜し、その石英基板に対し、窒素雰囲気中で、蒸着面側から別の石英基板を貼り付けた後、測定に用いた。この結果、2mDBqPDfha(略称)は515nmにりん光発光のピークを有し、緑色りん光発光材料のホスト材料としても十分な $T_1$ 準位を有していることがわかった。

40

【0171】

次に、2mDBqPDfha(略称)について、サイクリックボルタンメトリ(CV)測定を行った。CV測定には、電気化学アナライザー(ビー・エー・エス(株)製、型番:ALSモデル600Aまたは600C)を用いた。測定法は実施例1と同様に行った。

【0172】

2mDBqPDfha(略称)のCV測定からLUMO準位を算出した結果、-2.93eVをLUMO準位(還元電位)とした。

50

## 【0173】

これらの結果より、本発明の一態様の 2 m D B q P D f h a（略称）は、比較的深い L U M O 準位を持つことが分かった。

## 【0174】

また、薄膜状態の 2 m D B q P D f h a（略称）のイオン化ポテンシャルの値を大気中にて光電子分光法（理研計器社製、A C - 3）で測定した。得られたイオン化ポテンシャルの値を、負の値に換算した結果、2 m D B q P D f h a（略称）の H O M O 準位は - 6 . 5 1 e V であった。薄膜の吸収スペクトルのデータより、直接遷移を仮定した T a u c プロットから求めた 2 m D B q P D f h a（略称）の吸収端は 3 . 1 1 e V であった。従って、2 m D B q P D f h a（略称）の固体状態の光学的エネルギーギャップは 3 . 1 1 e V と見積もられ、先に得た H O M O 準位と、このエネルギーギャップの値から、2 m D B q P D f h a（略称）の L U M O 準位を - 3 . 4 e V と見積もることができる。このように、2 m D B q P D f h a（略称）は固体状態において、比較的深い H O M O 準位と L U M O 準位を有しており、3 . 1 1 e V の広いエネルギーギャップを有していることがわかった。

10

## 【0175】

次に、2 m D B q P D f h a（略称）を液体クロマトグラフ質量分析（L i q u i d C h r o m a t o g r a p h y M a s s S p e c t r o m e t r y（略称：L C / M S 分析））によって質量（M S）分析した。測定法は実施例 1 と同様に行った。

## 【0176】

図 3 7 に、解離させたプロダクトイオンを飛行時間（T O F）型 M S で検出した結果を示す。

20

## 【0177】

図 3 7 の結果から、2 m D B q P D f h a（略称）は、主として  $m/z = 785$  付近および  $m/z = 403$  付近、 $m/z = 631$  付近にプロダクトイオンが検出されることがわかった。なお、図 3 7 に示す結果は、2 m D B q P D f h a（略称）に由来する特徴的な結果を示すものであることから、混合物中に含まれる 2 m D B q P D f h a（略称）を同定する上での重要なデータであるといえる。

## 【0178】

なお、 $m/z = 631$  付近のプロダクトイオンは、2 m D B q P D f h a（略称）におけるベンゼン骨格が二つ脱離した状態（ $C_{48}H_{27}$ ）のラジカルカチオンと推定される。

30

## 【0179】

また、 $m/z = 403$  付近のプロダクトイオンは、2 m D B q P D f h a（略称）における 2-フェニル-ジベンゾ [ f , h ] キノキサリニル基および 1 つのベンゼン骨格が脱離した状態（ $C_{32}H_{19}$ ）のカチオンと推定される。

## 【実施例 4】

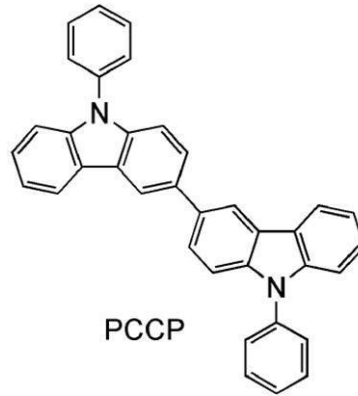
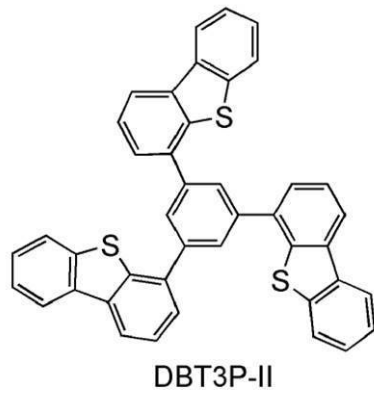
## 【0180】

本実施例では、本発明の一態様である発光素子 1 について図 7 を用いて説明する。本実施例で用いた有機化合物の分子構造を以下に示す。

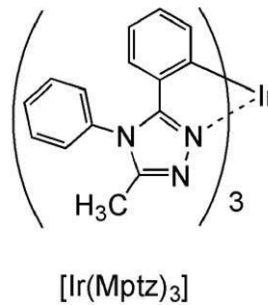
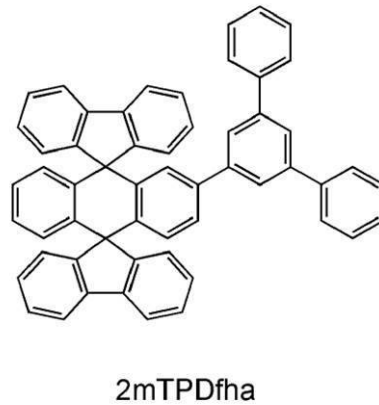
## 【0181】

40

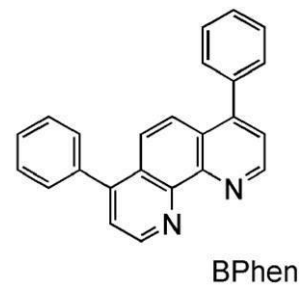
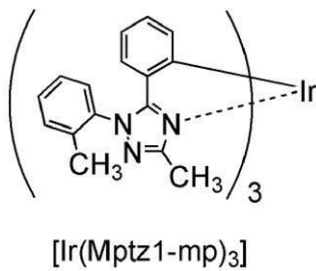
## 【化 1 6】



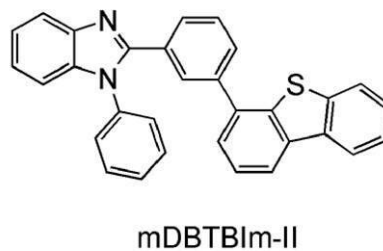
10



20



30



## 【0182】

40

## 《発光素子の作製》

まず、陽極 1101 として 110 nm の膜厚でケイ素を含むインジウム錫酸化物 (ITO) が成膜されたガラス基板を用意した。ITO 表面は、2 mm 角の大きさで表面が露出するよう周辺をポリイミド膜で覆い、電極面積は 2 mm × 2 mm とした。この基板上に発光素子を形成するための前処理として、基板表面を水で洗浄し、200 °C で 1 時間焼成した後、UV オゾン処理を 370 秒行った。その後、10<sup>-4</sup> Pa 程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において 170 °C で 30 分間の真空焼成を行った後、基板を 30 分程度放冷した。

## 【0183】

次に、陽極 1101 が形成された面が下方となるように、基板を真空蒸着装置内に設け

50

られたホルダーに固定した。

#### 【0184】

真空蒸着装置内を $10^{-4}$  Paに減圧した後、1, 3, 5-トリ（ジベンゾチオフェン-4-イル）ベンゼン（略称：DBT3P-II）と酸化モリブデン（VI）とを、DBT3P-II：酸化モリブデン＝2：1（重量比）となるように共蒸着することにより、正孔注入層1107を形成した。膜厚は40 nmとした。なお、共蒸着とは、異なる複数の物質をそれぞれ異なる蒸発源から同時に蒸発させる蒸着法である。

#### 【0185】

続いて、9-フェニル-9H-3-（9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル）カルバゾール（略称：PCCP）を20 nm蒸着することにより正孔輸送層1103を形成した。

#### 【0186】

さらに、正孔輸送層1103上に、実施の形態1で示したアントラセン化合物である2'-（3, 5-ジフェニル）フェニル-ジスピロ〔9H-フルオレン-9, 9'（10'H）-アントラセン-10', 9''-（9H）フルオレン〕（略称：2mTPDfha）と、トリス（5-メチル-3, 4-ジフェニル-4H-1, 2, 4-トリアゾラト）イリジウム（III）（略称：〔Ir（Mptz）<sub>3</sub>〕）とを、2mTPDfha：〔Ir（Mptz）<sub>3</sub>〕＝1：0.06（重量比）となるよう30 nm蒸着した後、2-〔3-（ジベンゾチオフェン-4-イル）フェニル〕-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール（略称：mDBTBIm-II）と、トリス〔3-メチル-1-（2-メチルフェニル）-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾラト〕イリジウム（III）（略称：〔Ir（Mptz1-mp）<sub>3</sub>〕）とを、mDBTBIm-II：〔Ir（Mptz1-mp）<sub>3</sub>〕＝1：0.06（重量比）となるように10 nm蒸着して積層することにより、発光層1104を形成した。

#### 【0187】

次に、バソフェナントロリン（略称：BPhen）を20 nm蒸着することにより、電子輸送層1105を形成した。

#### 【0188】

さらに電子輸送層1105上にフッ化リチウムを1 nmとなるように蒸着することによって電子注入層1108を形成した。最後に、陰極1102としてアルミニウムを200 nm成膜し、発光素子を完成させた。上述した蒸着過程においては、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

#### 【0189】

以下に完成させた発光素子1の素子構成を示す。

#### 【0190】

##### 【表1】

|               | 機能層 | 正孔<br>注入層                               | 正孔<br>輸送層 | 発光層                                                |                                                          | 電子<br>輸送層 | 電子<br>注入層 |
|---------------|-----|-----------------------------------------|-----------|----------------------------------------------------|----------------------------------------------------------|-----------|-----------|
| 発光<br>素子<br>1 | 膜厚  | 40 nm                                   | 20 nm     | 30 nm                                              | 10 nm                                                    | 20 nm     | 1 nm      |
|               | 構成  | DBT3P-II<br>: MoO <sub>x</sub><br>= 2:1 | PCCP      | 2mTPDfha<br>: [Ir(Mptz) <sub>3</sub> ]<br>= 1:0.06 | mDBTBIm-II<br>: [Ir(Mptz1-mp) <sub>3</sub> ]<br>= 1:0.06 | BPhen     | LiF       |

陽極: 110 nm ITO, 陰極: 200 nm Al

#### 【0191】

《発光素子の動作特性》

以上により得られた発光素子1を、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 1 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。

【0192】

まず、発光素子 1 の電流密度－輝度特性を図 12 に示す。なお、図 12 において、縦軸は、輝度（ $\text{cd}/\text{m}^2$ ）、横軸は電流密度（ $\text{mA}/\text{cm}^2$ ）を示す。また、発光素子 1 の電圧－輝度特性を図 13 に示す。なお、図 13 において、縦軸は、輝度（ $\text{cd}/\text{m}^2$ ）、横軸は、電圧（V）を示す。また、発光素子 1 の輝度－電流効率特性を図 14 に示す。なお、図 14 において、縦軸は、電流効率（ $\text{cd}/\text{A}$ ）、横軸は、輝度（ $\text{cd}/\text{m}^2$ ）を示す。また、発光素子 1 の電圧－電流特性を図 15 に示す。なお、図 15 において、縦軸は、電流（mA）、横軸は、電圧（V）を示す。また、発光素子 1 の色度特性を図 16 に示す。なお、図 16 において、縦軸は色度、横軸は輝度を示す。

10

【0193】

図 12 より、本発明の一態様であるアントラセン化合物 2mTPDfha（略称）を発光層に用いた場合、高効率な素子が得られることが分かった。また、図 16 より輝度による色度変化が少なく、良好なキャリアバランスの素子が得られることがわかった。また、良好な色度が得られ、本発明の一態様であるアントラセン化合物 2mTPDfha（略称）が高い  $T_1$  を持つために、青色燐光素子のホスト材料として好適であることが分かった。また、 $1000\text{cd}/\text{m}^2$  付近における発光素子 1 の主な初期特性値を以下の表 2 に示す。

【0194】

【表 2】

20

|           | 電圧<br>(V) | 電流<br>(mA) | 電流密度<br>( $\text{mA}/\text{cm}^2$ ) | 色度(x, y)     | 輝度<br>( $\text{cd}/\text{m}^2$ ) | 電流効率<br>( $\text{cd}/\text{A}$ ) | パワー効率<br>( $\text{lm}/\text{W}$ ) |
|-----------|-----------|------------|-------------------------------------|--------------|----------------------------------|----------------------------------|-----------------------------------|
| 発光素子<br>1 | 6.2       | 0.10       | 2.6                                 | (0.20, 0.40) | 880                              | 34                               | 17                                |

【0195】

上記結果から、本実施例で作製した発光素子 1 は、高効率な青色燐光素子であることがわかった。

30

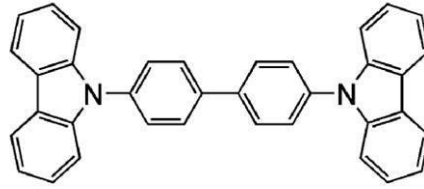
【実施例 5】

【0196】

本実施例では、本発明の一態様である発光素子 2 について説明する。なお、本実施例における発光素子 2 の説明には、実施例 4 で発光素子 1 の説明に用いた図 7 を用いることとする。本実施例で用いた有機化合物の分子構造を以下に示す。

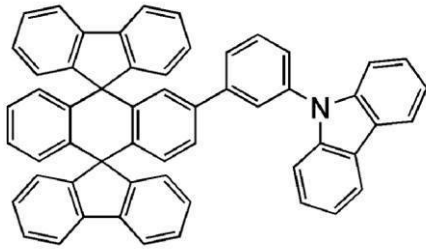
【0197】

## 【化 1 7】

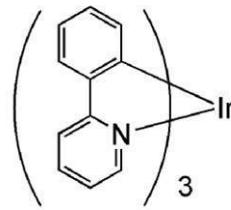


CBP

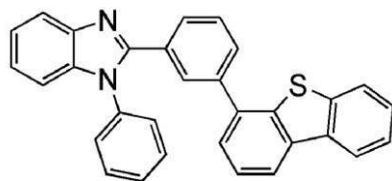
10



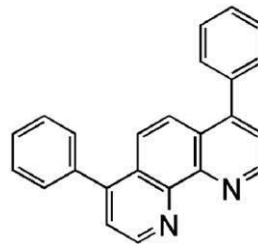
2mCzPDfha

[Ir(ppy)<sub>3</sub>]

20



mDBTBIm-II



BPhen

30

## 【0198】

## 《発光素子の作製》

まず、陽極1101として110nmの膜厚でケイ素を含むインジウム錫酸化物（ITO）が成膜されたガラス基板を用意した。ITO表面は、2mm角の大きさで表面が露出するよう周辺をポリイミド膜で覆い、電極面積は2mm×2mmとした。この基板上に発光素子を形成するための前処理として、基板表面を水で洗浄し、200℃で1時間焼成した後、UVオゾン処理を370秒行った。その後、 $10^{-4}$ Pa程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において170℃で30分間の真空焼成を行った後、基板を30分程度放冷した。

40

## 【0199】

次に、陽極1101が形成された面が下方となるように、基板を真空蒸着装置内に設けられたホルダーに固定した。

## 【0200】

真空蒸着装置内を $10^{-4}$ Paに減圧した後、4,4'-ジ（N-カルbazolリル）ビフェニル（略称：CBP）と酸化モリブデン（VI）とを、CBP：酸化モリブデン＝2：

50

1（重量比）となるように共蒸着することにより、正孔注入層 1107 を形成した。膜厚は 60 nm とした。

#### 【0201】

続いて、構造式（103）で表されるアントラセン化合物である 9-（3- {ジスピロ [9H-フルオレン-9, 9'（10'H）-アントラセン-10', 9''-（9H）フルオレン] 2'-イル} フェニル）-9H-カルバゾール（略称：2mCzPDfha）を 20 nm 蒸着することにより正孔輸送層 1103 を形成した。

#### 【0202】

さらに、正孔輸送層 1103 上に、構造式（103）で表されるアントラセン化合物である 2mCzPDfha（略称）と、トリス（2-フェニルピリジナト）イリジウム（IrIr）（略称：[Ir(ppy)<sub>3</sub>]）とを、2mCzPDfha : [Ir(ppy)<sub>3</sub>] = 1 : 0.06（重量比）となるよう 40 nm 蒸着することにより、発光層 1104 を形成した。

#### 【0203】

次に、2- [3-（ジベンゾチオフェン-4-イル）フェニル]-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール（略称：mDBTBIIm-Ir）を 15 nm 蒸着した後、バソフェナントロリン（略称：BPhen）を 20 nm 蒸着することにより、電子輸送層 1105 を形成した。

#### 【0204】

さらに電子輸送層 1105 上にフッ化リチウムを 1 nm となるように蒸着することによって電子注入層 1108 を形成した。最後に、陰極 1102 としてアルミニウムを 200 nm 成膜し、発光素子を完成させた。上述した蒸着過程においては、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

#### 【0205】

以下に完成させた発光素子 2 の素子構成を示す。

#### 【0206】

#### 【表 3】

|               | 機能層 | 正孔<br>注入層              | 正孔<br>輸送層 | 発光層                                               | 電子<br>輸送層       |       | 電子<br>注入層 |
|---------------|-----|------------------------|-----------|---------------------------------------------------|-----------------|-------|-----------|
| 発光<br>素子<br>2 | 膜厚  | 60 nm                  | 20 nm     | 40 nm                                             | 15 nm           | 20 nm | 1 nm      |
|               | 構成  | CBP<br>: MoOx<br>= 2:1 | 2mCzPDfha | 2mCzPDfha<br>:[Ir(ppy) <sub>3</sub> ]<br>= 1:0.06 | mDBTBIIm-<br>II | BPhen | LiF       |

陽極: 110 nm ITSO, 陰極: 200 nm Al

#### 【0207】

《発光素子の動作特性》

以上により得られた発光素子 2 を、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 2 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。

#### 【0208】

まず、発光素子 2 の電流密度-輝度特性を図 17 に示す。なお、図 17 において、縦軸は、輝度（cd/m<sup>2</sup>）、横軸は電流密度（mA/cm<sup>2</sup>）を示す。また、発光素子 2 の電圧-輝度特性を図 18 に示す。なお、図 18 において、縦軸は、輝度（cd/m<sup>2</sup>）、横軸は、電圧（V）を示す。また、発光素子 2 の電圧-電流特性を図 19 に示す。なお、図 19 において、縦軸は、電流（mA）、横軸は、電圧（V）を示す。また、発光素子 2 の

色度特性を図 20 に示す。なお、図 20 において、縦軸は色度、横軸は輝度を示す。

【0209】

図 17 より、本発明の一態様であるアントラセン化合物 2 m C z P D f h a （略称）を正孔輸送層、発光層に用いた場合、高効率な素子が得られることが分かった。また、図 20 より輝度による色度変化が少なく、良好なキャリアバランスの素子が得られることがわかった。また、良好な色度が得られ、本発明の一態様であるアントラセン化合物 2 m C z P D f h a （略称）が高い  $T_1$  を持つために、緑色燐光素子のホスト材料として好適であることが分かった。また、 $1000\text{ cd/m}^2$  付近における発光素子 2 の主な初期特性値を以下の表 4 に示す。

【0210】

10

【表 4】

|               | 電圧<br>(V) | 電流<br>(mA) | 電流密度<br>(mA/cm <sup>2</sup> ) | 色度(x, y)     | 輝度<br>(cd/m <sup>2</sup> ) | 電流効率<br>(cd/A) | パワー効率<br>(lm/W) |
|---------------|-----------|------------|-------------------------------|--------------|----------------------------|----------------|-----------------|
| 発光<br>素子<br>2 | 9.2       | 0.13       | 3.4                           | (0.30, 0.62) | 970                        | 29             | 9.8             |

【0211】

上記結果から、本実施例で作製した発光素子 2 は、高効率な緑色素子であることがわかった。

20

【0212】

また、発光素子 2 に  $0.1\text{ mA}$  の電流を流した際の発光スペクトルを、図 21 に示す。図 21 では縦軸が発光強度（任意単位）、横軸が波長（nm）を示す。発光強度は最大発光強度を 1 とした相対的な値として示す。図 21 に示す通り、発光素子 2 の発光スペクトルは  $509\text{ nm}$  付近に最大発光波長を有した  $[\text{Ir}(\text{ppy})_3]$  由来のスペクトルを呈しており、発光素子 2 は、緑色の発光を呈する発光素子であることがわかった。

【実施例 6】

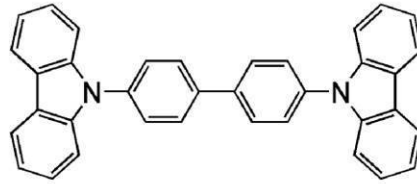
【0213】

本実施例では、本発明の一態様である発光素子 3 について説明する。なお、本実施例における発光素子 3 の説明には、実施例 4 で発光素子 1 の説明に用いた図 7 を用いることとする。本実施例で用いた有機化合物の分子構造を以下に示す。

30

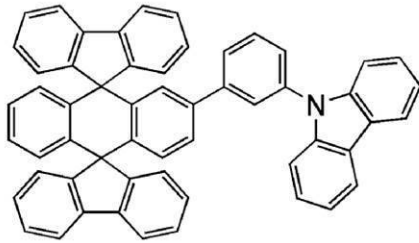
【0214】

## 【化 1 8】

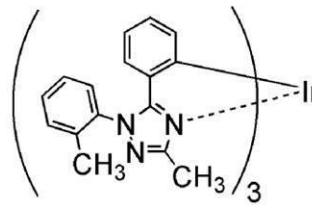


CBP

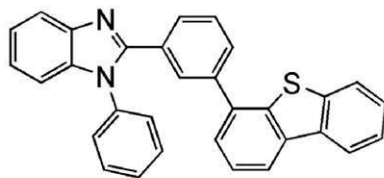
10



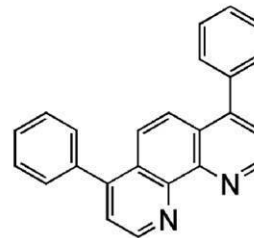
2mCzPDfha

[Ir(Mptz1-mp)<sub>3</sub>]

20



mDBTBIm-II



BPhen

30

## 【0215】

## ≪発光素子の作製≫

まず、陽極 1101 として 110 nm の膜厚でケイ素を含むインジウム錫酸化物 (ITO) が成膜されたガラス基板を用意した。ITO 表面は、2 mm 角の大きさに表面が露出するよう周辺をポリイミド膜で覆い、電極面積は 2 mm × 2 mm とした。この基板上に発光素子を形成するための前処理として、基板表面を水で洗浄し、200 °C で 1 時間焼成した後、UV オゾン処理を 370 秒行った。その後、 $10^{-4}$  Pa 程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において 170 °C で 30 分間の真空焼成を行った後、基板を 30 分程度放冷した。

40

## 【0216】

次に、陽極 1101 が形成された面が下方となるように、基板を真空蒸着装置内に設けられたホルダーに固定した。

## 【0217】

真空蒸着装置内を  $10^{-4}$  Pa に減圧した後、4,4'-ジ(N-カルbazリル)ビフェニル (略称: CBP) と酸化モリブデン (VI) とを、CBP:酸化モリブデン = 2:1 (重量比) となるように共蒸着することにより、正孔注入層 1107 を形成した。膜厚は 60 nm とした。

50

## 【0218】

続いて、構造式(103)で表されるアントラセン化合物である9-(3-{ジスピロ[9H-フルオレン-9,9'-(10'H)-アントラセン-10',9''-(9H)フルオレン]2'-イル}フェニル)-9H-カルバゾール(略称:2mCzPDfha)を20nm蒸着することにより正孔輸送層1103を形成した。

## 【0219】

さらに、正孔輸送層1103上に、構造式(103)で表されるアントラセン化合物である2mCzPDfha(略称)と、トリス[3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-フェニル-1H-1,2,4-トリアゾラト]イリジウム(III)(略称:[Ir(Mptz1-mp)<sub>3</sub>])とを、2mCzPDfha:[Ir(Mptz1-mp)<sub>3</sub>]=1:0.06(重量比)となるよう30nm蒸着した後、2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール(略称:mDBTBIIm-III)と、[Ir(Mptz1-mp)<sub>3</sub>](略称)とをmDBTBIIm-III:[Ir(Mptz1-mp)<sub>3</sub>]=1:0.06(重量比)となるように10nm蒸着して積層することにより、発光層1104を形成した。

## 【0220】

次に、バソフェナントロリン(略称:BPhen)を15nm蒸着することにより、電子輸送層1105を形成した。

## 【0221】

さらに電子輸送層1105上にフッ化リチウムを1nmとなるように蒸着することによって電子注入層1108を形成した。最後に、陰極1102としてアルミニウムを200nm成膜し、発光素子を完成させた。上述した蒸着過程においては、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

## 【0222】

以下に完成させた発光素子3の素子構成を示す。

## 【0223】

## 【表5】

|       | 機能層 | 正孔注入層        | 正孔輸送層     | 発光層                                           |                                                | 電子輸送層 | 電子注入層 |
|-------|-----|--------------|-----------|-----------------------------------------------|------------------------------------------------|-------|-------|
| 発光素子3 | 膜厚  | 60 nm        | 20 nm     | 30 nm                                         | 10 nm                                          | 15 nm | 1 nm  |
|       | 構成  | CBP:MoOx=2:1 | 2mCzPDfha | 2mCzPDfha:[Ir(Mptz1-mp) <sub>3</sub> ]=1:0.06 | mDBTBIImII:[Ir(Mptz1-mp) <sub>3</sub> ]=1:0.06 | BPhen | LiF   |

陽極:110 nm ITO, 陰極:200 nm Al

## 【0224】

《発光素子の動作特性》

以上により得られた発光素子3を、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3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。

## 【0225】

まず、発光素子3の電流密度-輝度特性を図22に示す。なお、図22において、縦軸は、輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、横軸は電流密度( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )を示す。また、発光素子3の電圧-輝度特性を図23に示す。なお、図23において、縦軸は、輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、横軸は、電圧(V)を示す。また、発光素子3の輝度-電流効率特性を図24に示す。なお、図24において、縦軸は、電流効率( $\text{cd}/\text{A}$ )、横軸は、輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )を示す。また、発光素子3の電圧-電流特性を図25に示す。なお、図25において、縦軸は、

電流（mA）、横軸は、電圧（V）を示す。また、発光素子 3 の色度特性を図 2 6 に示す。なお、図 2 6 において、縦軸は色度、横軸は輝度を示す。

#### 【0226】

図 2 2 より、本発明の一態様であるアントラセン化合物 2 m C z P D f h a（略称）を正孔輸送層、発光層に用いた場合、高効率な素子が得られることが分かった。また、図 2 6 より輝度による色度変化が少なく、良好なキャリアバランスの素子が得られることがわかった。また、良好な色度が得られ、本発明の一態様であるアントラセン化合物 2 m C z P D f h a（略称）が高い  $T_1$  を持つために、青色燐光素子のホスト材料として好適であることが分かった。また、 $1000\text{ cd/m}^2$  付近における発光素子 3 の主な初期特性値を以下の表 6 に示す。

10

#### 【0227】

##### 【表 6】

|               | 電圧<br>(V) | 電流<br>(mA) | 電流密度<br>(mA/cm <sup>2</sup> ) | 色度(x, y)     | 輝度<br>(cd/m <sup>2</sup> ) | 電流効率<br>(cd/A) | パワー効率<br>(lm/W) |
|---------------|-----------|------------|-------------------------------|--------------|----------------------------|----------------|-----------------|
| 発光<br>素子<br>3 | 6.6       | 0.10       | 2.5                           | (0.19, 0.31) | 660                        | 26             | 13              |

#### 【0228】

上記結果から、本実施例で作製した発光素子 3 は、高効率な青色素子であることがわかった。

20

#### 【0229】

また、発光素子 3 に  $0.1\text{ mA}$  の電流を流した際の発光スペクトルを、図 2 7 に示す。図 2 7 では縦軸が発光強度（任意単位）、横軸が波長（nm）を示す。発光強度は最大発光強度を 1 とした相対的な値として示す。図 2 7 に示す通り、発光素子 3 の発光スペクトルは  $472\text{ nm}$  付近に最大発光波長を有しており、発光素子 3 は、青色の発光を呈する発光素子であることがわかった。

#### 【実施例 7】

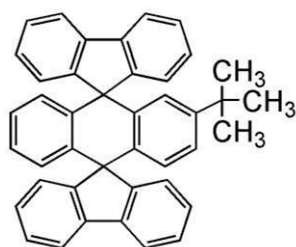
#### 【0230】

本実施例では、実施の形態 1 に一般式（G 1）として示した本発明の一態様である 2 m T P D f h a（略称）（構造式（100））、2 m C z P D f h a（略称）（構造式（103））で表されるアントラセン化合物について、HOMO、LUMO の値と  $T_1$  準位、ガラス転移点（Tg）を測定した。また比較例として、2 t B u D f h a（略称）についてもそれぞれ測定した。それぞれを表 7 に示す。なお、2 t B u D f h a（略称）の構造式を以下に示す。

30

#### 【0231】

##### 【化 1 9】



2tBuDfha

40

#### 【0232】

HOMO に関しては薄膜の A C - 2（2 m C z P D f h a（略称））又は A C - 3（2 m T P D f h a（略称））で測定した（共に理研計器株式会社製）。LUMO に関しては、

50

薄膜の吸収スペクトルからエネルギーギャップ ( $B_g$ 、 $\Delta E$ ) を求めて、測定により得られた HOMO と算出したエネルギーギャップから算出した。

#### 【0233】

$T_1$  準位に関しては、薄膜を 10 K まで冷却し、励起光を当てて得られた発光スペクトルを時間分解し燐光ピークを求め、求めた燐光の最も短波長側のピーク値をエネルギー値に変換した値である。

#### 【0234】

ガラス転移点に関しては、示差走査熱量分析装置 (DSC、パーキンエルマー社製、Pyris 1 DSC) を用いて調べた。

#### 【0235】

10

#### 【表7】

| 化合物名            | 溶液(CV)[eV] |       | 薄膜<br>(AC-2又はAC-3)[eV] |       |            | T <sub>1</sub> 準位<br>[nm] | T <sub>g</sub> [°C] |
|-----------------|------------|-------|------------------------|-------|------------|---------------------------|---------------------|
|                 | HOMO       | LUMO  | HOMO                   | LUMO  | $\Delta E$ |                           |                     |
| (100) 2mTPDfha  | ND         | -2.20 | -6.06                  | -2.17 | 3.89       | 453                       | 169                 |
| (103) 2mCzPDfha | -5.90      | -2.16 | -5.91                  | -2.41 | 3.50       | —                         | 185                 |
| 2tBuDfha        | ND         | ND    | -6.58                  | -2.69 | 3.89       | —                         | 151                 |

#### 【0236】

20

本発明のアントラセン化合物は、深い HOMO 準位を持つことがわかった。また、広い  $B_g$  を持つため、比較的浅い LUMO 準位を持つことがわかった。

#### 【0237】

また、高い  $T_1$  準位をもち、可視域の発光材料のホストとして用いることができることが分かった。特に青や緑など、短波長発光の燐光素子に好適に用いることができる。特に、2mTPDfha (略称) は、2tBuDfha (略称) と同等に広い  $B_g$  をもち、 $S_1$  準位が特に高いことが分かった。

#### 【0238】

また表7に、実施例1及び実施例2のCV測定で求めた2mTPDfha (略称) と2mCzPDfha (略称) の、溶液の酸化電位 (HOMO)、還元電位 (LUMO) についても掲載した。2tBuDfha は、酸化側は 1.5 V まで、還元側は -3 V まで走査したが、明確なピークは検出されなかった。これは Dfha 骨格が酸化及び還元されにくい骨格であるためと考えられる。そのため、本発明のアントラセン化合物の様に、アントラセン骨格の2位にアリール基が結合していることで、酸化または還元されやすくなることが示唆された。そのため、2mTPDfha (略称) および2mCzPDfha (略称) は、2tBuDfha (略称) およびDfha (略称) と比較して、キャリア輸送性が向上し、素子の駆動電圧が低くなると考えられる。

30

#### 【0239】

また、本発明のアントラセン化合物は、高い  $T_g$  を持つため、耐熱性が良好な材料であることが分かった。これは、Dfha 骨格 (9, 10-ジ- (フルオレン-9, 9'-ジイル)-9, 10-アントラセン) そのものが、高い  $T_g$  をもつためであると考えられる。また Dfha 骨格にさらにアリール基が結合している本発明のアントラセン化合物は、アルキル基のみが結合している2tBuDfha (略称) よりも、さらに高い  $T_g$  をもつことが分かった。そのため、本発明のアントラセン化合物を素子に用いた場合、耐熱性の良好な素子が得られると考えられる。

40

#### 【0240】

以上のことから、本発明のアントラセン化合物は、深い HOMO 準位と、浅い LUMO 準位をもち、高い  $T_1$  準位をもち、耐熱性も良好であることから、発光素子に好適に用いることができることがわかった。特に青や緑など、短波長発光の燐光素子のホストに好適であると考えられる。

50

## 【0241】

一般的に、 $T_g$ の高い材料は分子量が小さく、その分耐熱性（ $T_g$ ）が低くなってしまうジレンマがあったが、本発明のアントラセン化合物は、高い $T_g$ を保ちつつ、耐熱性も兼ね備えた材料と言える。

## 【実施例8】

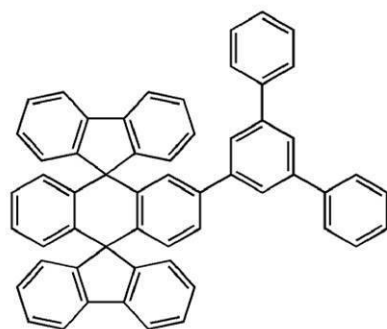
## 【0242】

本実施例では、実施の形態1に一般式（G1）として示した本発明の一態様である2mTPDfha（略称）（構造式（100））、2mCzPDfha（略称）（構造式（103））で表されるアントラセン化合物のHOMO準位、LUMO準位、 $T_g$ 準位を算出した。また比較例として、2tBuDfha（略称）、2CzPDfha（略称）、Dfha（略称）のHOMO準位、LUMO準位、 $T_g$ 準位を算出した。これらの構造式を以下に示す。

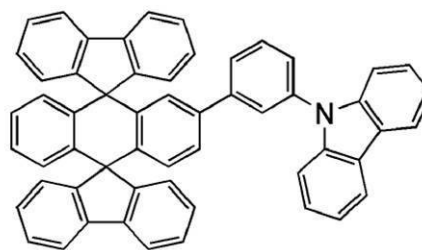
10

## 【0243】

【化 20】

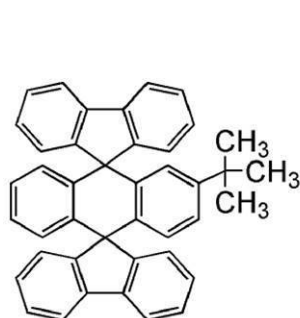


(100) 2mTPDfha

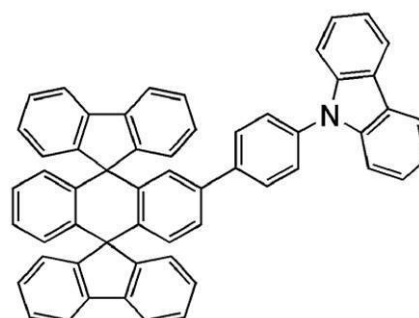


(103) 2mCzPDfha

10

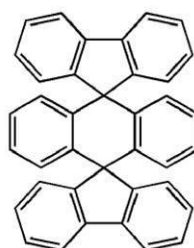


2tBuDfha



2CzPDfha

20



Dfha

30

【0244】

40

計算方法に関しては以下の通りである。なお、量子化学計算プログラムとしては、Gaussian 09を使用した。計算は、ハイパフォーマンスコンピュータ（SGI社製、Altix 4700）を用いて行った。

【0245】

まず、一重項における最安定構造を密度汎関数法で計算した。基底関数として、6-311（それぞれの原子価軌道に三つの短縮関数を用いた triple split valence 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、1s から 3s の軌道が考慮され、また、炭素原子であれば、1s から 4s、2p から 4p 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。汎関数は B3

50

L Y Pを用いた。また、その構造のL U M OとH O M Oの計算をそれぞれ行った。

#### 【0246】

続けて、三重項における最安定構造を計算した。一重項と三重項における最安定構造のエネルギー差から、 $T_1$ 準位のエネルギーを計算した。基底関数は、6-311G(d, p)を用いた。汎関数はB3LYPである。

#### 【0247】

計算した結果を表8に示す。

#### 【0248】

#### 【表8】

| 化合物名            | HOMO [eV] | LUMO [eV] | $\Delta E$ [eV] | T1準位 [nm] |
|-----------------|-----------|-----------|-----------------|-----------|
| (100) 2mTPDfha  | -5.93     | -1.17     | 4.76            | 442       |
| (103) 2mCzPDfha | -5.53     | -1.23     | 4.30            | 443       |
| 2tBuDfha        | -5.92     | -1.13     | 4.79            | 441       |
| 2CzPDfha        | -5.51     | -1.22     | 4.28            | 461       |
| Dfha            | -5.96     | -1.14     | 4.82            | 441       |

10

#### 【0249】

以上の結果より、D f h a (9, 10-ジ- (フルオレン-9, 9'-ジイル)-9, 10-アントラセン) 骨格そのものが非常に高い $T_1$ 準位を持つことが示唆された。また、そのアントラセンの2位に置換基が結合した、本発明のアントラセン化合物の一態様である2mTPDfha (略称)、2mCzPDfha (略称) も、同様に非常に高い $T_1$ 準位を保つことが示唆された。また、アントラセン骨格の2位に結合している置換基が、m-フェニレンを介してカルバゾール-9-イル基が結合している2mCzPDfha (略称)の方が、p-フェニレンを介して結合している2CzPDfha (略称)よりも $T_1$ 準位が高いことが示唆された。そのため、2mCzPDfha (略称)の方が2CzPDfha (略称)よりも、より短波長の発光素子におけるホスト材料として好適であることがわかった。

20

#### 【0250】

これは、スピン密度分布の違いによるものと考えられる。図28(A)に2mCzPDfha (略称)、図28(B)に2CzPDfha (略称)のスピン密度分布を上記方法で計算した結果を示す。

30

#### 【0251】

図28(A)に示すように、2mCzPDfha (略称)はアントラセンの9位に置換されているフルオレンから、アントラセンの2位から4位側のベンゼン骨格、アントラセンの2位に置換されているフェニレン、そのフェニレンに置換しているカルバゾールの窒素原子付近までにスピン密度が分布していることがわかった。

#### 【0252】

2mCzPDfha (略称)ではカルバゾールの窒素原子までであったのに対して、図28(B)に示すように、2CzPDfha (略称)ではカルバゾール全体までスピン密度が分布していることがわかった。そのため、2mCzPDfha (略称)の方がエネルギー的に不安定化し、 $T_1$ 準位が高くなっていると考えられる。

40

#### 【0253】

そのため、置換基のベンゼン環のメタ位でアントラセン骨格の2位に結合している2mTPDfha (略称)および2mCzPDfha (略称)は、2tBuDfha (略称)およびDfha (略称)と同等に高い $T_1$ 準位を維持できる。

#### 【0254】

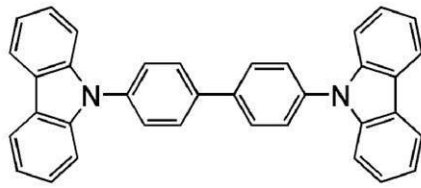
次に、比較発光素子1、比較発光素子2および比較発光素子3として、2tBuDfha (略称)を発光層に用いた素子について、図7を用いて説明する。比較発光素子1で用い

50

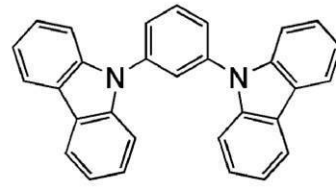
た有機化合物の分子構造を以下に示す。

【0255】

【化21】

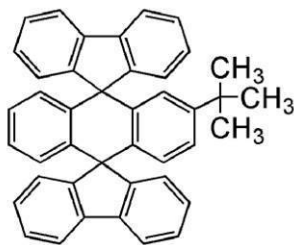


CBP

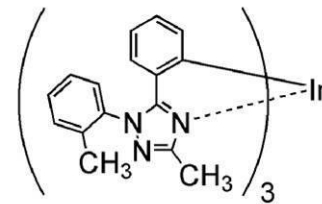


mCP

10

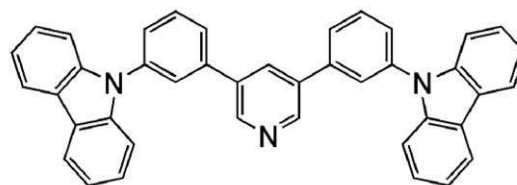


2tBuDfha

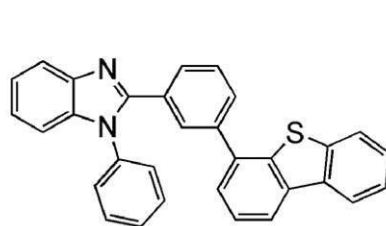


[Ir(Mptz1-mp)<sub>3</sub>]

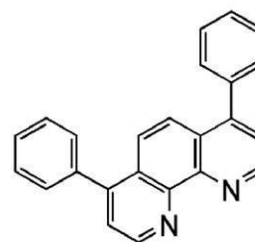
20



35DCzPPy



mDBTBIm-II



BPhen

30

【0256】

《比較発光素子1の作製》

まず、陽極1101として110nmの膜厚でケイ素を含むインジウム錫酸化物（ITO）が成膜されたガラス基板を用意した。ITO表面は、2mm角の大きさで表面が露出するよう周辺をポリイミド膜で覆い、電極面積は2mm×2mmとした。この基板上に発光素子を形成するための前処理として、基板表面を水で洗浄し、200℃で1時間焼成した後、UVオゾン処理を370秒行った。その後、10<sup>-4</sup>Pa程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において170℃で30分間の真空焼成を行った後、基板を30分程度放冷した。

【0257】

次に、陽極1101が形成された面が下方となるように、基板を真空蒸着装置内に設けられたホルダーに固定した。

40

50

## 【0258】

真空蒸着装置内を $10^{-4}$  Paに減圧した後、4, 4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル(略称: CBP)と酸化モリブデン(VI)とを、CBP:酸化モリブデン=2:1(重量比)となるように共蒸着することにより、正孔注入層1107を形成した。膜厚は60 nmとした。なお、共蒸着とは、異なる複数の物質をそれぞれ異なる蒸発源から同時に蒸発させる蒸着法である。

## 【0259】

続いて、1, 3-ビス(N-カルバゾリル)ベンゼン(略称: mCP)を20 nm蒸着することにより正孔輸送層1103を形成した。

## 【0260】

さらに、正孔輸送層1103上に、比較例のアントラセン化合物である2tBuDfhaと、トリス[3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾラト]イリジウム(III)((略称:[Ir(Mptz1-mp)]<sub>3</sub>)とを、2tBuDfha:[Ir(Mptz1-mp)]<sub>3</sub>=1:0.06(重量比)となるよう30 nm蒸着した後、2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール(略称:mDBTBIIm-II)と、トリス[3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾラト]イリジウム(III)((略称:[Ir(Mptz1-mp)]<sub>3</sub>)とを、mDBTBIIm-II:[Ir(Mptz1-mp)]<sub>3</sub>=1:0.06(重量比)となるように10 nm蒸着して積層することにより、発光層1104を形成した。

## 【0261】

次に、バソフェナントロリン(略称:BPhen)を15 nm蒸着することにより、電子輸送層1105を形成した。

## 【0262】

さらに電子輸送層1105上にフッ化リチウムを1 nmとなるように蒸着することによって電子注入層1108を形成した。最後に、陰極1102としてアルミニウムを200 nm成膜し、発光素子を完成させた。上述した蒸着過程においては、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

## 【0263】

以下に完成させた比較発光素子1の素子構成を示す。

## 【0264】

## 【表9】

|         | 機能層 | 正孔注入層                     | 正孔輸送層 | 発光層                                          |                                                 | 電子輸送層 | 電子注入層 |
|---------|-----|---------------------------|-------|----------------------------------------------|-------------------------------------------------|-------|-------|
| 比較発光素子1 | 膜厚  | 60 nm                     | 20 nm | 30 nm                                        | 10 nm                                           | 15 nm | 1 nm  |
|         | 構成  | CBP:MoO <sub>x</sub> =2:1 | mCP   | 2tBuDfha:[Ir(Mptz1-mp)] <sub>3</sub> =1:0.06 | mDBTBIIm-II:[Ir(Mptz1-mp)] <sub>3</sub> =1:0.06 | BPhen | LiF   |

陽極:110 nm ITSO, 陰極:200 nm Al

## 【0265】

《比較発光素子2の作製》

発光層1104の他は、比較発光素子1と同様に作製した。発光層1104は、正孔輸送層1103上に、比較例のアントラセン化合物である2tBuDfha(略称)と、3, 5-ビス[3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ピリジン(略称:35DC

z P P y) と、トリス [3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾラト] イリジウム (I I I) ((略称: [I r (M p t z 1-m p) <sub>3</sub>])) とを、2 t B u D f h a : 3 5 D C z P P y : [I r (M p t z 1-m p) <sub>3</sub>] = 1 : 0. 3 : 0. 0 6 (重量比) となるよう 3 0 n m 蒸着した後、2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール (略称: m D B T B I m-I I) と、トリス [3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾラト] イリジウム (I I I) ((略称: [I r (M p t z 1-m p) <sub>3</sub>])) とを、m D B T B I m-I I : [I r (M p t z 1-m p) <sub>3</sub>] = 1 : 0. 0 6 (重量比) となるように 1 0 n m 蒸着して積層することにより形成した。

10

## 【0266】

以下に完成させた比較発光素子 2 の素子構成を示す。

## 【0267】

## 【表10】

|          | 機能層 | 正孔注入層                          | 正孔輸送層 | 発光層                                                                 |                                                       | 電子輸送層 | 電子注入層 |
|----------|-----|--------------------------------|-------|---------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------|-------|-------|
| 比較発光素子 2 | 膜厚  | 60 nm                          | 20 nm | 30 nm                                                               | 10 nm                                                 | 15 nm | 1 nm  |
|          | 構成  | CBP : MoO <sub>x</sub> = 2 : 1 | mCP   | 2tBuDfha : 35DCzPPy : [Ir(Mptz1-mp) <sub>3</sub> ] = 1 : 0.3 : 0.06 | mDBTBI m-II : [Ir(Mptz1-mp) <sub>3</sub> ] = 1 : 0.06 | BPhen | LiF   |

20

陽極: 110 nm ITSO, 陰極: 200 nm Al

## 【0268】

《比較発光素子 3 の作製》

陽極 1 1 0 1 と正孔注入層 1 1 0 7 は、比較発光素子 1 と同様に作製した。

30

## 【0269】

正孔注入層 1 1 0 7 上に、比較例のアントラセン化合物である 2 t B u D f h a (略称) を 2 0 n m 蒸着することにより正孔輸送層 1 1 0 3 を形成した。

## 【0270】

さらに、正孔輸送層 1 1 0 3 上に、比較例のアントラセン化合物である 2 t B u D f h a と、トリス (2-フェニルピリジナト) イリジウム (I I I) (略称: [I r (p p y) <sub>3</sub>])) とを、2 t B u D f h a : [I r (p p y) <sub>3</sub>] = 1 : 0. 0 6 (重量比) となるよう 4 0 n m 蒸着することにより、発光層 1 1 0 4 を形成した。

## 【0271】

次に、2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール (略称: m D B T B I m-I I) を 1 5 n m 蒸着した後、バソフェナントロリン (略称: B P h e n) を 2 0 n m 蒸着することにより、電子輸送層 1 1 0 5 を形成した。

40

## 【0272】

さらに電子輸送層 1 1 0 5 上にフッ化リチウムを 1 n m となるように蒸着することによって電子注入層 1 1 0 8 を形成した。最後に、陰極 1 1 0 2 としてアルミニウムを 2 0 0 n m 成膜し、発光素子を完成させた。上述した蒸着過程においては、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

## 【0273】

以下に完成させた比較発光素子 3 の素子構成を示す。

50

【0274】

【表11】

|         | 機能層 | 正孔注入層                            | 正孔輸送層    | 発光層                                             | 電子輸送層                       |       | 電子注入層 |
|---------|-----|----------------------------------|----------|-------------------------------------------------|-----------------------------|-------|-------|
| 比較発光素子3 | 膜厚  | 60 nm                            | 20 nm    | 30 nm                                           | 15 nm                       | 20 nm | 1 nm  |
|         | 構成  | CBP<br>:MoO <sub>x</sub><br>=2:1 | 2tBuDfha | 2tBuDfha<br>:[Ir(ppy) <sub>3</sub> ]<br>=1:0.06 | mDBTBI <sub>m</sub> -<br>II | BPhen | LiF   |

10

陽極:110 nm ITSO, 陰極:200 nm Al

【0275】

《比較発光素子の動作特性》

以上により得られた比較発光素子1、比較発光素子2および比較発光素子3を、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、これらの比較発光素子1、比較発光素子2および比較発光素子3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。

20

【0276】

まず、比較発光素子1および比較発光素子2の輝度－電流効率特性を図29に示す。なお、図29において、縦軸は、電流効率（cd/A）、横軸は、輝度（cd/m<sup>2</sup>）を示す。また、比較発光素子1および比較発光素子2の電圧－電流特性を図30に示す。なお、図30において、縦軸は、電流（mA）、横軸は、電圧（V）を示す。また比較発光素子1および比較発光素子2の色度特性を図31に示す。なお、図31において、縦軸は色度、横軸は輝度を示す。

【0277】

また、比較発光素子1および比較発光素子2に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図32示す。図32では縦軸が発光強度（任意単位）、横軸が波長（nm）を示す。発光強度は最大発光強度を1とした相対的な値として示す。図32に示す通り、比較発光素子1および比較発光素子2の発光スペクトルは466nm付近に最大発光波長を有しており、比較発光素子1および比較発光素子2は、青色の発光を呈する発光素子であることがわかった。

30

【0278】

また、比較発光素子3の電圧－電流特性を図33に示す。なお、図33において、縦軸は、電流（mA）、横軸は、電圧（V）を示す。また比較発光素子3の色度特性を図34に示す。なお、図34において、縦軸は色度、横軸は輝度を示す。

【0279】

また、比較発光素子3に0.5mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図35に示す。図35では縦軸が発光強度（任意単位）、横軸が波長（nm）を示す。発光強度は最大発光強度を1とした相対的な値として示す。図35に示す通り、比較発光素子3の発光スペクトルは510nm付近に最大発光波長を有しており、比較発光素子3は、緑色の発光を呈する発光素子であることがわかった。

40

【0280】

また、1000cd/m<sup>2</sup>付近における比較発光素子1、比較発光素子2および比較発光素子3の主な初期特性値を以下の表12に示す。

【0281】

【表 1 2】

|                 | 電圧<br>(V) | 電流<br>(mA) | 電流密度<br>(mA/cm <sup>2</sup> ) | 色度(x, y)    | 輝度<br>(cd/m <sup>2</sup> ) | 電流効率<br>(cd/A) | パワー効率<br>(lm/W) |
|-----------------|-----------|------------|-------------------------------|-------------|----------------------------|----------------|-----------------|
| 比較<br>発光素子<br>1 | 7.2       | 0.24       | 6.0                           | (0.17,0.28) | 1280                       | 21             | 9.3             |
| 比較<br>発光素子<br>2 | 6.0       | 0.09       | 2.2                           | (0.17,0.26) | 630                        | 29             | 15              |
| 比較<br>発光素子<br>3 | 14        | 2.23       | 56                            | (0.30,0.62) | 1140                       | 2.0            | 0.5             |

10

20

## 【0282】

図29より、比較発光素子1および比較発光素子2は、高効率な青色燐光発光素子であることがわかった。これは実施例7で算出したとおり、2tBuDfha（略称）の高いT<sub>1</sub>準位によるものであると考えられる。また、図31より、比較発光素子1および比較発光素子2は、輝度による色度変化が少なく、良好なキャリアバランスの素子が得られることがわかった。

## 【0283】

比較発光素子2の方が、比較発光素子1よりも駆動電圧が低下し、効率が向上した。これは、2tBuDfha（略称）が、実施例7の測定結果でもあるとおり、深いHOMO準位と浅いLUMO準位とをもち、比較的酸化・還元されづらい化合物であるためと考えられる。そのため、図30で示したとおり、発光層に2tBuDfha（略称）とキャリア輸送材料である35DCzPPy（略称）を混合することで、駆動電圧が低くなったのだと考えられる。そしてキャリアバランスが向上したため、比較発光素子2は比較発光素子1と比較して効率が向上したと考えられる。なお、本発明のアントラセン化合物も、比較的深いHOMO準位と、浅いLUMO準位を持つため、本発明のあらゆるアントラセン化合物とPCCP（略称）や35DCzPPy（略称）の様なキャリア輸送性材料を混合させることで駆動電圧が低くなり、効率が向上すると考えられる。

30

## 【0284】

図36に比較発光素子3と、実施例5で示した発光素子2の電圧－電流特性を示す。これらの素子は、正孔輸送層と発光層のホストにそれぞれ同じ化合物（比較発光素子3は2tBuDfha（略称）、発光素子2は2mCzPDfha（略称））を用いている。比較発光素子3と比較して、発光素子2の方が高電圧側である程、電流が流れやすくなっている（傾きが大きい）。これは、2mCzPDfha（略称）を正孔輸送層に用いた発光素子2の方が、2tBuDfha（略称）を正孔輸送層に用いた比較発光素子3よりも正孔輸送性が高いことが原因の一つと考えられる。つまり、アントラセン骨格の2位にアール基が結合することでキャリア輸送性が向上すると考えられる。

40

## 【0285】

以上の結果より、本発明のアントラセン化合物は、高いT<sub>1</sub>と高いT<sub>g</sub>をもち、キャリア

50

輸送性があるため、特に青から緑の燐光発光素子のホスト材料やキャリア輸送性材料として好適であることがわかった。

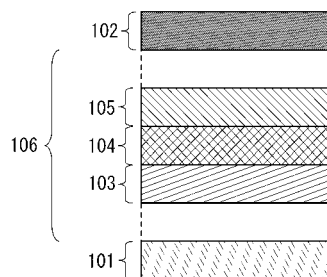
【符号の説明】

【0286】

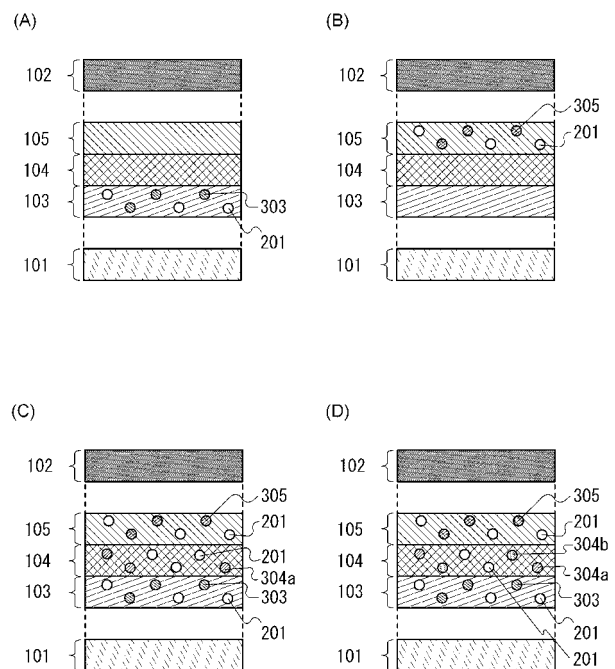
|       |             |    |
|-------|-------------|----|
| 101   | 陽極          |    |
| 102   | 陰極          |    |
| 103   | 正孔輸送層       |    |
| 104   | 発光層         |    |
| 105   | 電子輸送層       |    |
| 106   | EL層         | 10 |
| 107   | 正孔注入層       |    |
| 108   | 電子注入層       |    |
| 109   | 電荷発生層       |    |
| 201   | アントラセン化合物   |    |
| 203   | 化合物         |    |
| 204a  | 化合物         |    |
| 204b  | 化合物         |    |
| 205   | 化合物         |    |
| 301   | 電極          |    |
| 302   | EL層         | 20 |
| 304   | 電極          |    |
| 305   | 電荷発生層       |    |
| 1101  | 陽極          |    |
| 1102  | 陰極          |    |
| 1103  | 正孔輸送層       |    |
| 1104  | 発光層         |    |
| 1105  | 電子輸送層       |    |
| 1107  | 正孔注入層       |    |
| 1108  | 電子注入層       |    |
| 7100  | テレビジョン装置    | 30 |
| 7101  | 筐体          |    |
| 7102  | 表示部         |    |
| 7103  | スタンド        |    |
| 7111  | リモコン操作機     |    |
| 7200  | コンピュータ      |    |
| 7201  | 本体          |    |
| 7202  | 筐体          |    |
| 7203  | 表示部         |    |
| 7204  | キーボード       |    |
| 7205  | 外部接続ポート     | 40 |
| 7206  | ポインティングデバイス |    |
| 7300  | 携帯型ゲーム機     |    |
| 7301a | 筐体          |    |
| 7301b | 筐体          |    |
| 7302  | 連結部         |    |
| 7303a | 表示部         |    |
| 7303b | 表示部         |    |
| 7304  | スピーカ部       |    |
| 7305  | 記録媒体挿入部     |    |
| 7306  | 操作キー        | 50 |

|           |          |
|-----------|----------|
| 7 3 0 7   | 接続端子     |
| 7 3 0 8   | センサ      |
| 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 0   | タブレット型端末 |
| 7 5 0 1 a | 筐体       |
| 7 5 0 1 b | 筐体       |
| 7 5 0 2 a | 表示部      |
| 7 5 0 2 b | 表示部      |
| 7 5 0 3   | 軸部       |
| 7 5 0 4   | 電源       |
| 7 5 0 5   | 操作キー     |
| 7 5 0 6   | スピーカ     |
| 7 6 0 1   | 照明装置     |
| 7 6 0 2   | 照明装置     |
| 7 6 0 3   | 卓上照明装置   |
| 7 6 0 4   | 面状照明装置   |
| 7 7 0 1   | 照明部      |
| 7 7 0 3   | 支柱       |
| 7 7 0 5   | 支持台      |

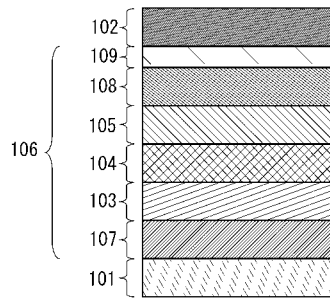
【図 1】



【図 2】

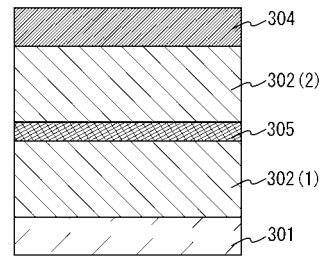


【図 3】

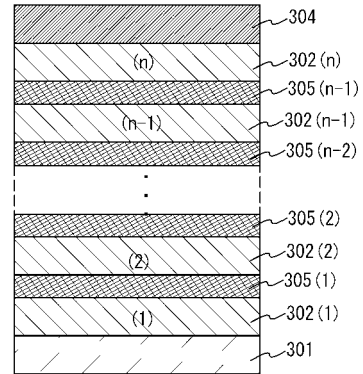


【図 4】

(A)

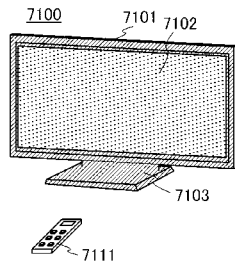


(B)

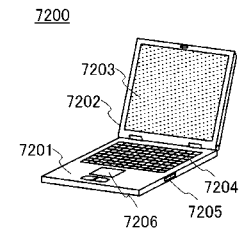


【図 5】

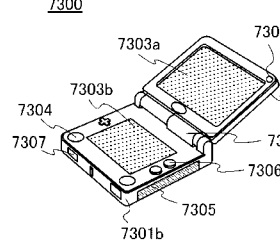
(A)



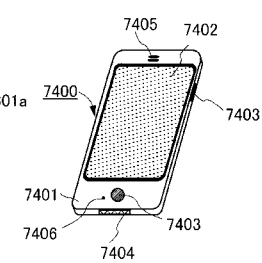
(B)



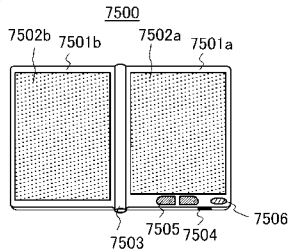
(C)



(D)

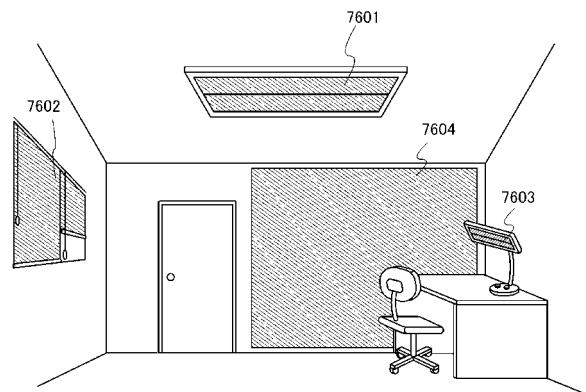


(E)

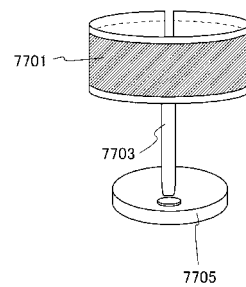


【図 6】

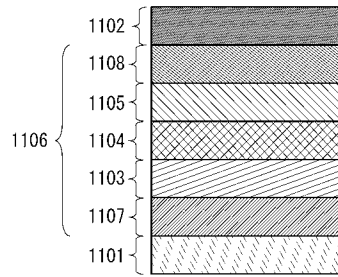
(A)



(B)

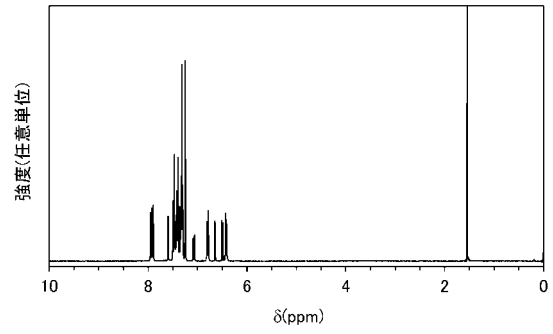


【図 7】

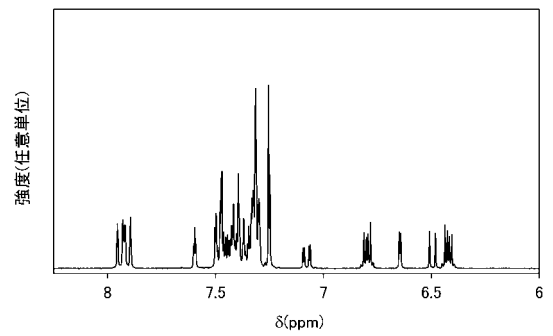


【図 8】

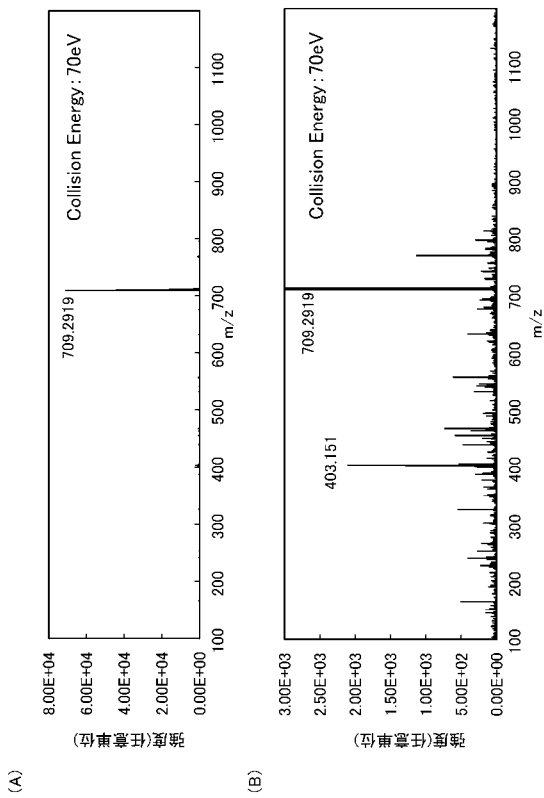
(A)



(B)

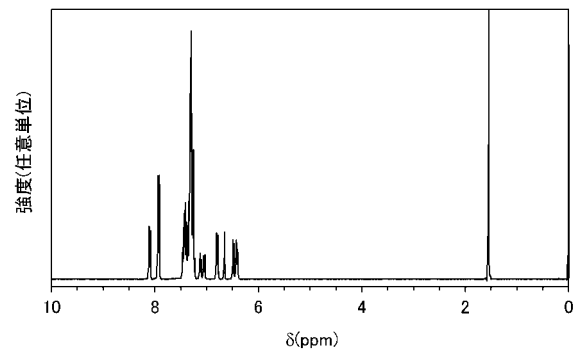


【図 9】

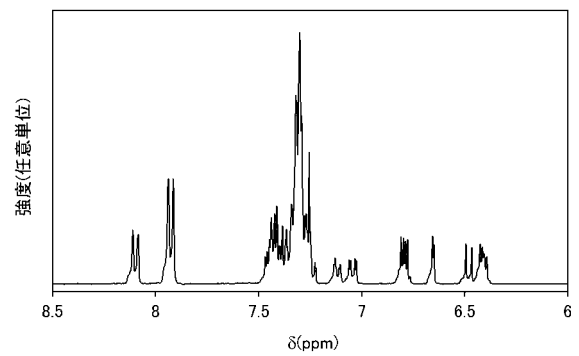


【図 10】

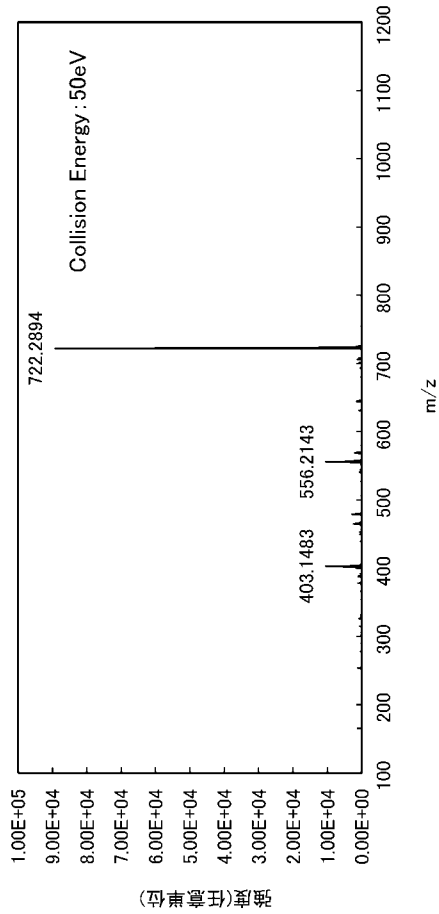
(A)



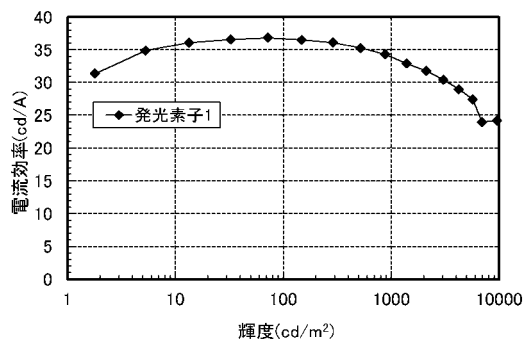
(B)



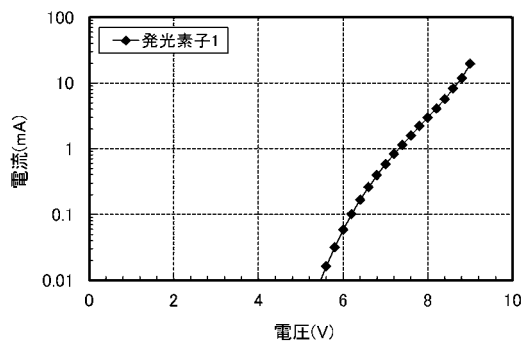
【図 1 1】



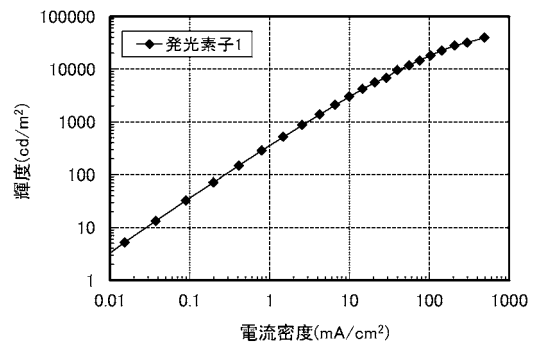
【図 1 4】



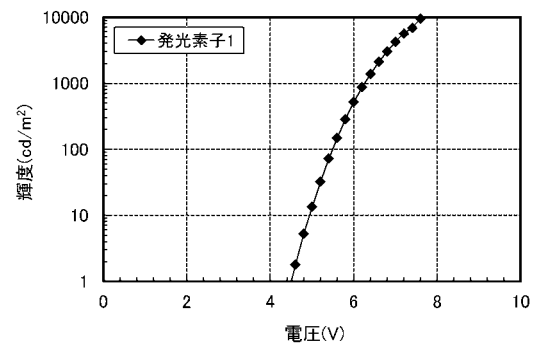
【図 1 5】



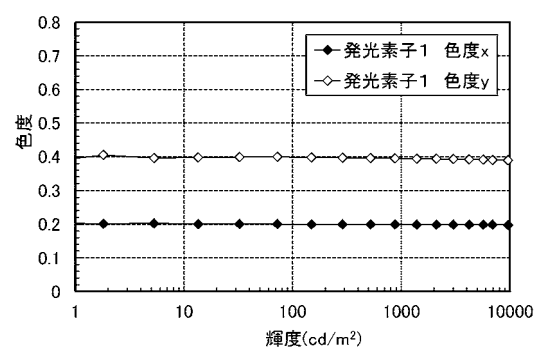
【図 1 2】



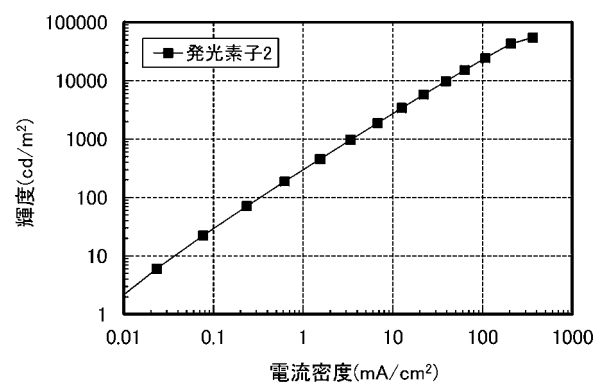
【図 1 3】



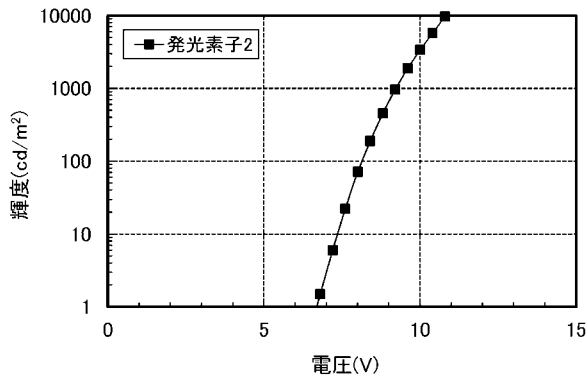
【図 1 6】



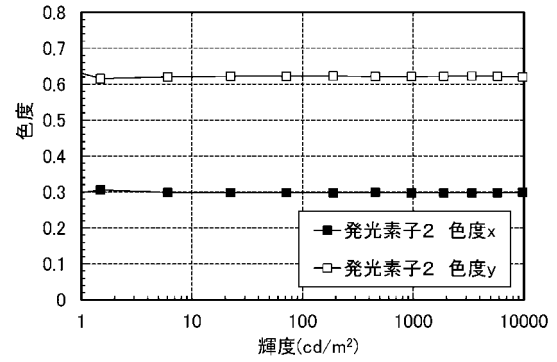
【図 1 7】



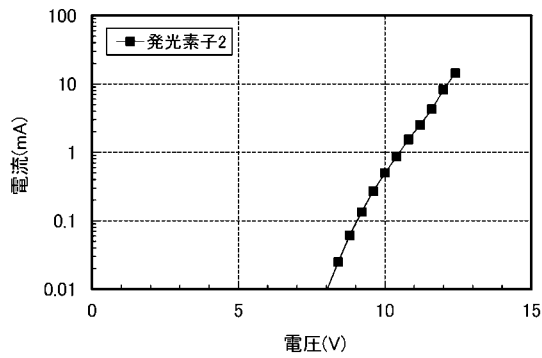
【図 18】



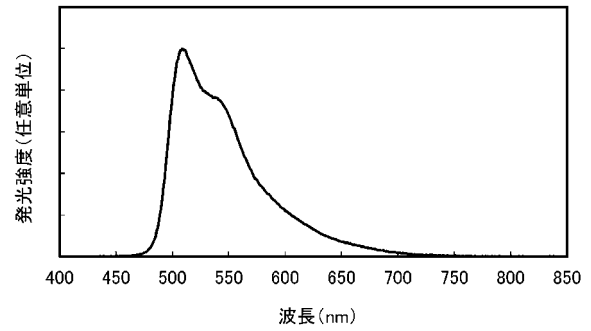
【図 20】



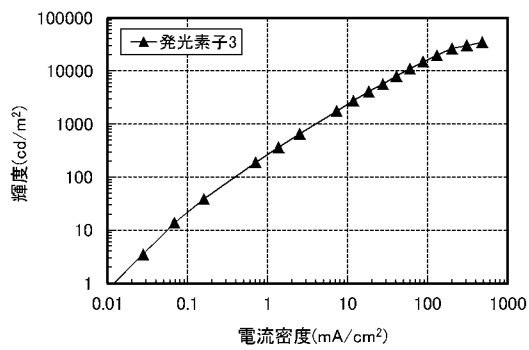
【図 19】



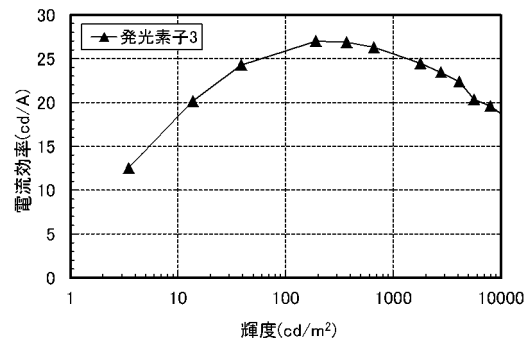
【図 21】



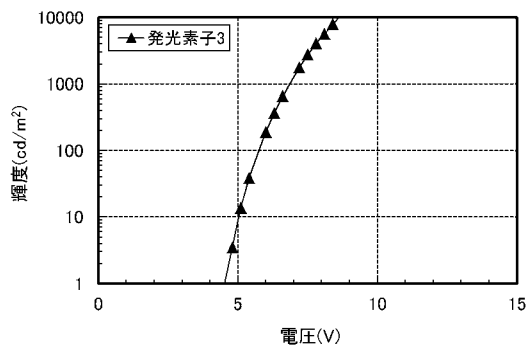
【図 22】



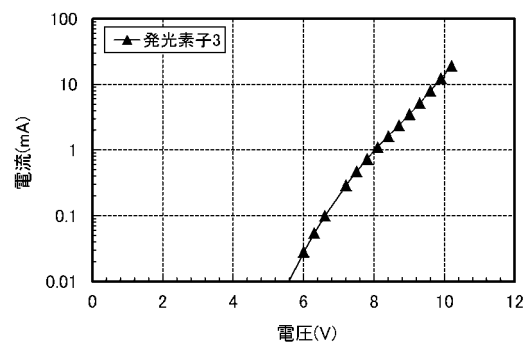
【図 24】



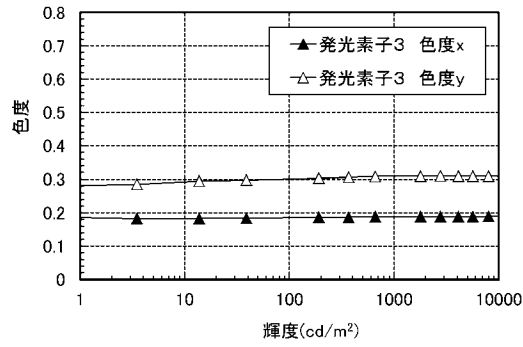
【図 23】



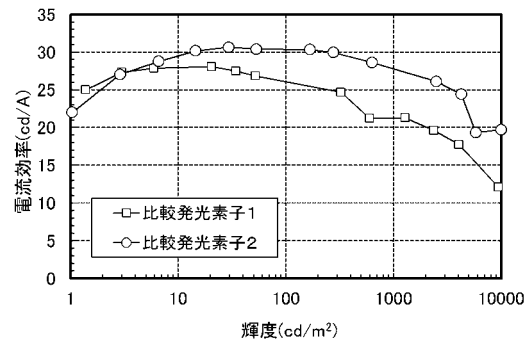
【図 25】



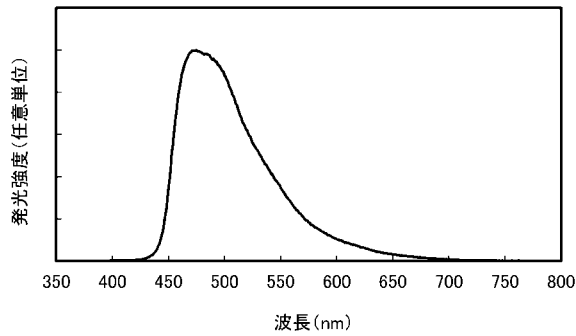
【図 2 6】



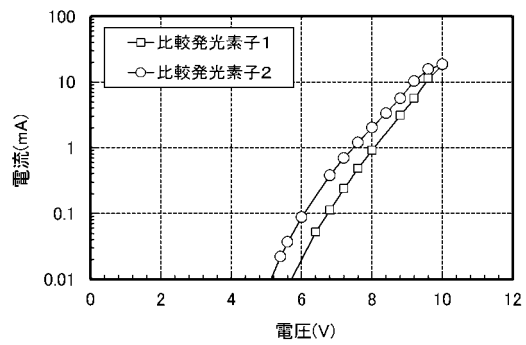
【図 2 9】



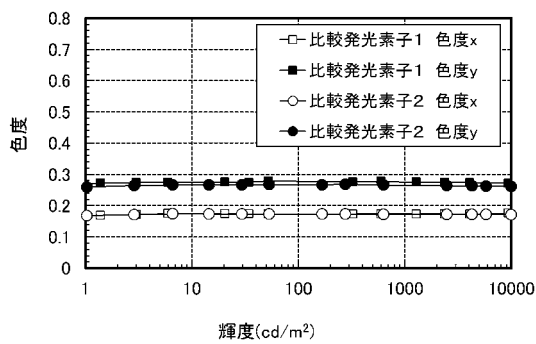
【図 2 7】



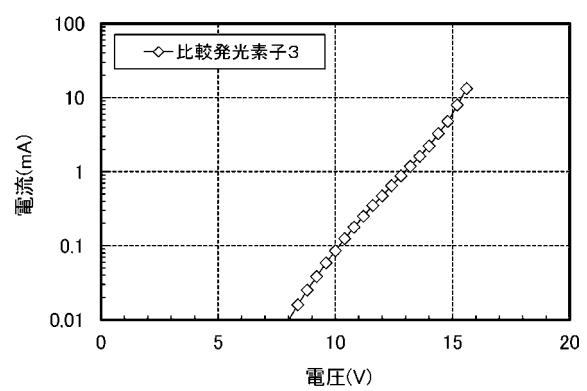
【図 3 0】



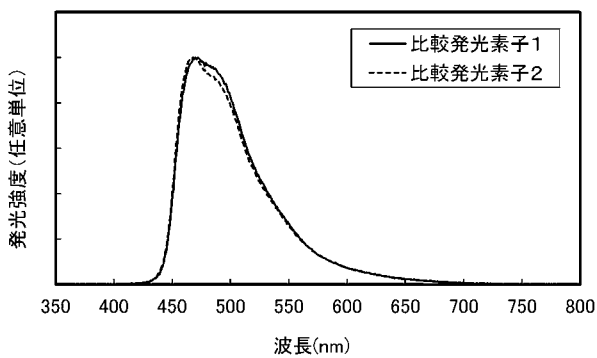
【図 3 1】



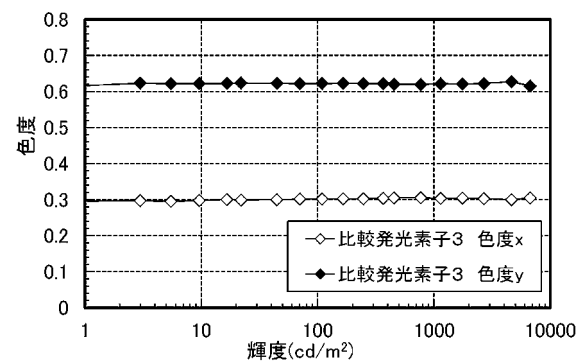
【図 3 3】



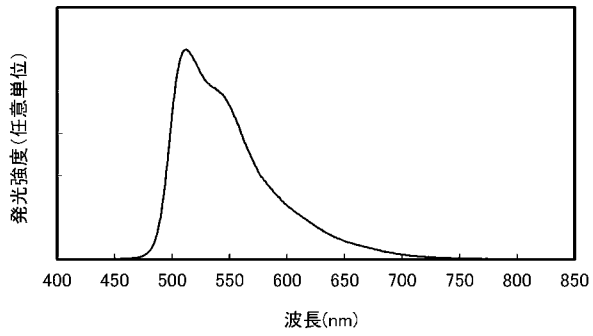
【図 3 2】



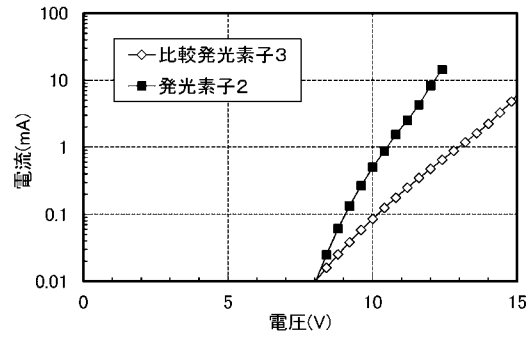
【図 3 4】



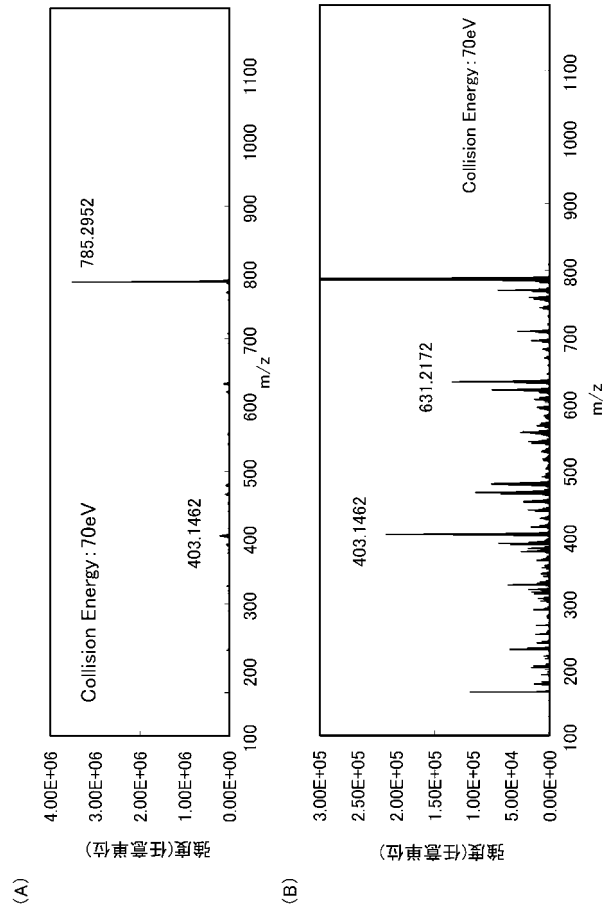
【図 3 5】



【図 3 6】



【図 3 7】



【図 28】

FIG. 28A

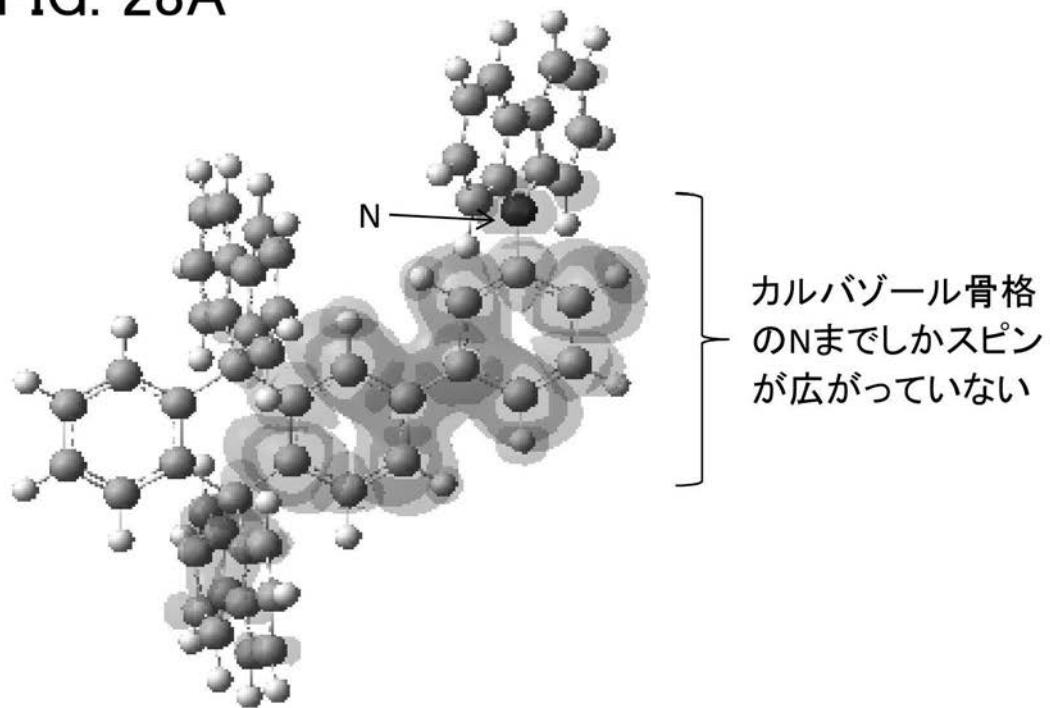
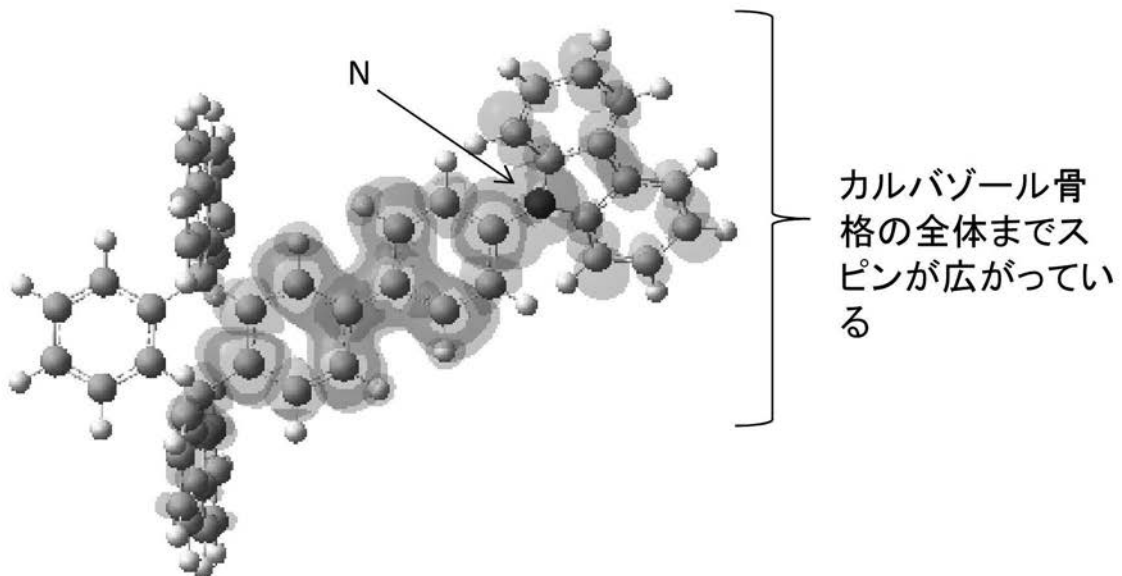


FIG. 28B



---

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I テーマコード (参考)  
C 0 9 K 11/06 6 9 0  
C 0 7 D 241/38  
C 0 7 D 209/82

(72)発明者 尾坂 晴恵

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

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB08 CC04 CC07 CC12 CC14 CC21 CC24  
DD59 DD67 DD68 DD69 DD73 DD76 DD78 FF13  
4C204 BB05 BB09 CB03 EB01 FB10 GB01  
4H006 AA01 AA03 AB92