

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2021年4月1日(01.04.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/059086 A1

(51) 国際特許分類:

C07D 409/10 (2006.01) C07D 307/91 (2006.01)
C07D 471/04 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C07D 209/86 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/IB2020/058589

(22) 国際出願日: 2020年9月16日(16.09.2020)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2019-177516 2019年9月27日(27.09.2019) JP

(71) 出願人: 株式会社半導体エネルギー研究所
(SEMICONDUCTOR ENERGY LABORATORY

CO., LTD.) [JP/JP]; 〒2430036 神奈川県厚木市長谷398 Kanagawa (JP).

(72) 発明者: 多田杏奈(TADA, Anna); 〒2430036 神奈川県厚木市長谷398 株式会社半導体エネルギー研究所内 Kanagawa (JP). 川上祥子(KAWAKAMI, Sachiko); 〒2430036 神奈川県厚木市長谷398 株式会社半導体エネルギー研究所内 Kanagawa (JP). 奥山拓夢(OKUYAMA, Takumu); 〒2430036 神奈川県厚木市長谷398 株式会社半導体エネルギー研究所内 Kanagawa (JP). 鈴木恒徳(SUZUKI, Tsunenori); 〒2430036 神奈川県厚木市長谷398 株式会社半導体エネルギー研究所内 Kanagawa (JP). 瀬尾哲史(SEO, Satoshi); 〒2430036 神奈

(54) Title: ORGANIC COMPOUND, OPTICAL DEVICE, LIGHT EMITTING DEVICE, LIGHT EMITTING APPARATUS, ELECTRONIC DEVICE, AND LIGHTING DEVICE

(54) 発明の名称: 有機化合物、光デバイス、発光デバイス、発光装置、電子機器および照明装置

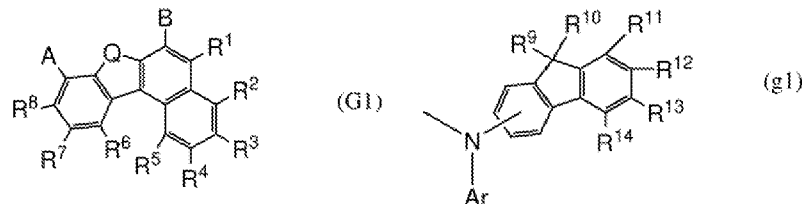
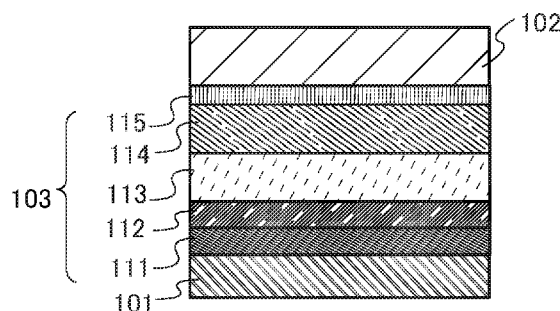


図1A



(57) Abstract: Provided is a novel organic compound. Provided is an organic compound represented by general formula (G1). (In general formula (G1), either A or B is a group represented by the general formula (g1). Furthermore, the other of A and B, R1-R8, and R11-R14 each independently represent hydrogen, an C1-6 alkyl group, a C3-6 cyclic hydrocarbon group, a C1-6 alkoxy group, a cyano group, a halogen, a C1-6 haloalkyl group, or a substituted or unsubstituted C6-60 aromatic hydrocarbon group. R9 and R10 each independently represent hydrogen, a C1-6 alkyl group, a C3-6 cyclic hydrocarbon group, a C1-6 alkoxy group, a cyano group, halogen, a C1-6 haloalkyl group, or a substituted or unsubstituted

川 県 厚 木 市 長 谷 398 株 式 会 社 半 導 体 エ ネ
ルギー研究所内 Kanagawa (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))
- 一 白黒。出願原本にはカラー又はグレースケールの情報が含まれており、PATENTSCOPE からのダウンロードが可能。

phenyl group, and Ar represents a substituted or unsubstituted C6-13 aryl group.)

(57) 要約: 新規有機化合物を提供する。下記一般式 (G 1) で表される有機化合物を提供する。(ただし、一般式 (G 1) において、A および B の一方は、下記一般式 (g 1) で表される基である。また、A および B の他方、R 1 乃至 R 8、R 11 乃至 R 14 は独立に水素および炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。R 9 および R 10 は独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、A r は置換または無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。)

明細書

発明の名称

有機化合物、光デバイス、発光デバイス、発光装置、電子機器および照明装置

技術分野

[0001]

本発明の一態様は、有機化合物、発光素子、発光デバイス、ディスプレイモジュール、照明モジュール、表示装置、発光装置、電子機器、照明装置および電子デバイスに関する。なお、本発明の一態様は、上記の技術分野に限定されない。本明細書等で開示する発明の一態様の技術分野は、物、方法、または、製造方法に関するものである。または、本発明の一態様は、プロセス、マシン、マニュファクチャ、または、組成物（コンポジション・オブ・マター）に関するものである。そのため、より具体的に本明細書で開示する本発明の一態様の技術分野としては、半導体装置、表示装置、液晶表示装置、発光装置、照明装置、蓄電装置、記憶装置、撮像装置、それらの駆動方法、または、それらの製造方法、を一例として挙げるができる。

背景技術

[0002]

有機化合物を用いたエレクトロルミネッセンス（EL：Electroluminescence）を利用する発光デバイス（有機ELデバイス）の実用化が進んでいる。これら発光デバイスの基本的な構成は、一对の電極間に発光材料を含む有機化合物層（EL層）を挟んだものである。この素子に電圧を印加して、キャリアを注入し、当該キャリアの再結合エネルギーを利用することにより、発光材料からの発光を得ることができる。

[0003]

このような発光デバイスは自発光型であるためディスプレイの画素として用いると、液晶に比べ、視認性が高く、バックライトが不要である等の利点があり、フラットパネルディスプレイ素子として好適である。また、このような発光デバイス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]

また、これらの発光デバイスは発光層を二次元に連続して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。これは、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。

[0005]

このように発光デバイスを用いたディスプレイや照明装置はさまざまな電子機器に適用好適であるが、より良好な特性を有する発光デバイスを求めて研究開発が進められている。

[先行技術文献]

[特許文献]

[0006]

[特許文献1] 中国特許出願公開第108689972号明細書

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007]

本発明の一態様では、新規有機化合物を提供することを目的とする。または、本発明の一態様では、

新規キャリア輸送性材料を提供することを目的とする。または、本発明の一態様では新規正孔輸送性材料を提供することを目的とする。

[0008]

または、本発明の他の一態様では、駆動電圧の低い発光デバイスを提供することを目的とする。または、本発明の一態様では、消費電力の小さい発光デバイス、発光装置、電子機器、表示装置および電子デバイスを各々提供することを目的とする。

[0009]

なお、これらの課題の記載は、他の課題の存在を妨げるものではない。なお、本発明の一態様は、必ずしも、これらの課題の全てを解決する必要はない。なお、これら以外の課題は、明細書、図面、請求項などの記載から、自ずと明らかとなるものであり、明細書、図面、請求項などの記載から、これら以外の課題を抽出することが可能である。

[0010]

本発明は上述の課題のうちいずれか一を解決すればよいものとする。

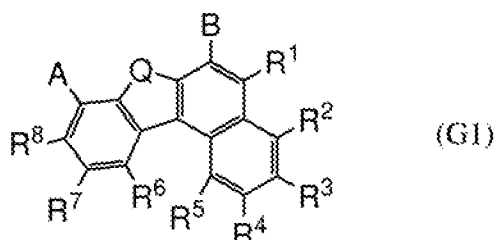
課題を解決するための手段

[0011]

本発明の一態様は、下記一般式（G1）で表される有機化合物である。

[0012]

[化1]

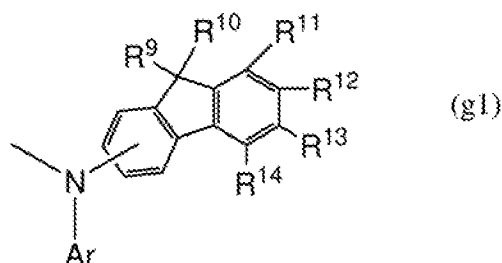


[0013]

ただし、上記一般式（G1）において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、AおよびBの一方は、下記一般式（g1）で表される基であり、他方は、水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、R¹乃至R⁸はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。

[0014]

[化2]



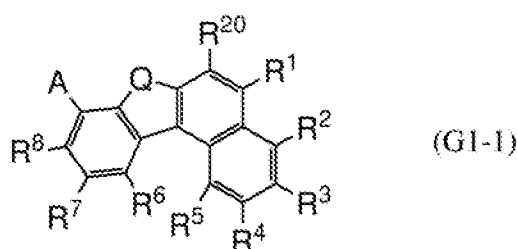
ただし、上記一般式 (g 1) において、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、 R^{11} 乃至 R^{14} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また Ar は置換または無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。

[0015]

または、本発明の他の一態様は、上記構成において、前記一般式 (G 1) が下記一般式 (G 1-1) で表される有機化合物である。

[0016]

[化3]

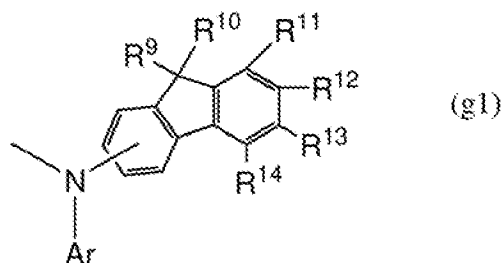


[0017]

ただし、上記一般式 (G 1-1) において、Q は酸素原子または硫黄原子である。また、A は、下記一般式 (g 1) で表される基であり、 R^{20} は、水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、 R^1 乃至 R^8 はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のアルキル基のいずれかを表す。

[0018]

[化4]



[0019]

ただし、上記一般式 (g 1) において、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、 R^{11} 乃至 R^{14} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換

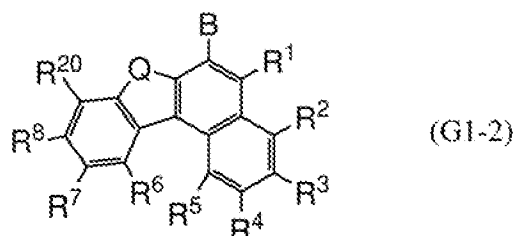
または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。またArは置換または無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。

[0020]

または、本発明の他の一態様は、上記構成において、前記一般式(G1)が下記一般式(G1-2)で表される有機化合物である。

[0021]

[化5]

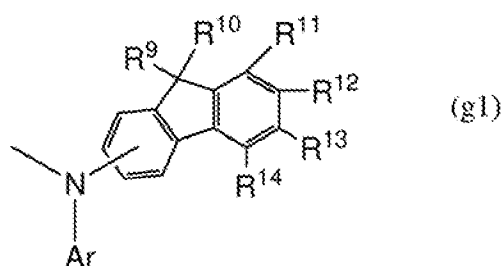


[0022]

ただし、上記一般式(G1-2)において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、Bは、上記一般式(g1)で表される基であり、R²⁰は、水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、R¹乃至R⁸はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のアルキル基のいずれかを表す。

[0023]

[化6]



[0024]

ただし、上記一般式(g1)において、R⁹およびR¹⁰はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、R¹¹乃至R¹⁴はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。またArは置換または無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。

[0025]

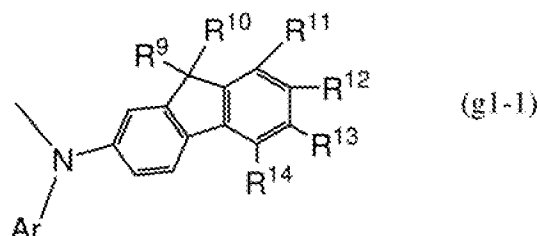
または、本発明の他の一態様は、上記構成において、R²⁰が水素である有機化合物である。

[0026]

または、本発明の他の一態様は、上記構成において、前記一般式（g 1）で表される基が、下記一般式（g 1-1）で表される基である有機化合物である。

[0027]

[化7]



[0028]

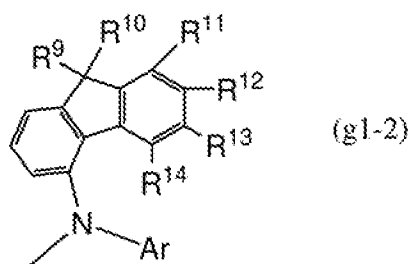
ただし、上記一般式（g 1-1）において、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、 R^{11} 乃至 R^{14} はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また Ar は置換または無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。

[0029]

または、本発明の他の一態様は、上記構成において、前記一般式（g 1）で表される基が、下記一般式（g 1-2）で表される基である有機化合物である。

[0030]

[化8]



[0031]

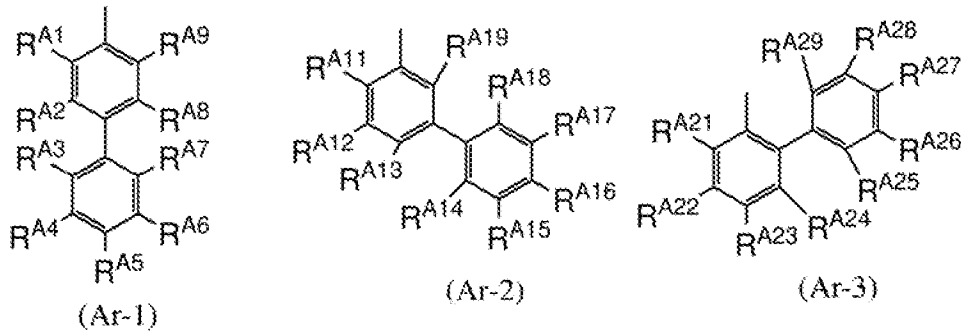
ただし、上記一般式（g 1-2）において、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、 R^{11} 乃至 R^{14} はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また Ar は置換または無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。

[0032]

または、本発明の他の一態様は、上記構成において、前記 Ar が、下記一般式（ $\text{Ar}-1$ ）乃至（ $\text{Ar}-3$ ）で表される有機化合物である。

[0033]

[化9]



[0034]

ただし、上記一般式 (Ar-1) 乃至 (Ar-3) において、 R^{A1} 乃至 R^{A9} 、 R^{A11} 乃至 R^{A19} および R^{A21} 乃至 R^{A29} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。

[0035]

または、本発明の他の一態様は、上記構成において、 R^{A1} 乃至 R^{A9} 、 R^{A11} 乃至 R^{A19} および R^{A21} 乃至 R^{A29} が水素である有機化合物である。

[0036]

または、本発明の他の一態様は、上記構成において、 R^9 および R^{10} がメチル基である有機化合物である。

[0037]

または、本発明の他の一態様は、上記構成において、 R^1 乃至 R^8 が水素である有機化合物である。

[0038]

または、本発明の他の一態様は、上記構成において、 R^{11} 乃至 R^{14} が水素である有機化合物である。

[0039]

または、本発明の他の一態様は、上記いずれかに記載の有機化合物を含む光デバイスである。

[0040]

または、本発明の他の一態様は、上記いずれかに記載の有機化合物を含む発光デバイスである。

[0041]

または、本発明の他の一態様は、上記光デバイスと、センサ、操作ボタン、スピーカ、または、マイクと、を有する電子機器である。

[0042]

または、本発明の他の一態様は、上記光デバイスと、トランジスタ、または、基板と、を有する発光装置である。

[0043]

または、本発明の他の一態様は、上記光デバイスと、筐体と、を有する照明装置である。

[0044]

なお、本明細書中における発光装置とは、発光デバイスを用いた画像表示デバイスを含む。また、発光デバイスにコネクタ、例えば異方導電性フィルム又は TCP (Tape Carrier Pa

ckage) が取り付けられたモジュール、TCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、又は発光デバイスにCOG (Chip On Glass) 方式によりIC (集積回路) が直接実装されたモジュールは、発光装置を有する場合がある。さらに、照明器具等は、発光装置を有する場合がある。

発明の効果

[0045]

本発明の一態様では、新規有機化合物を提供することができる。本発明の一態様では、新規電子輸送層用材料を提供することができる。または、本発明の一態様では、新規りん光発光デバイス用ホスト材料を提供することができる。

[0046]

または、本発明の他の一態様では、発光効率の高い発光デバイスを提供することができる。または、本発明の一態様では、消費電力の小さい発光デバイス、発光装置、電子機器、表示装置および電子デバイスを各々提供することができる。

[0047]

なお、これらの効果の記載は、他の効果の存在を妨げるものではない。なお、本発明の一態様は、必ずしも、これらの効果の全てを有する必要はない。なお、これら以外の効果は、明細書、図面、請求項などの記載から、自ずと明らかとなるものであり、明細書、図面、請求項などの記載から、これら以外の効果を抽出することが可能である。

図面の簡単な説明

[0048]

図1A、図1Bおよび図1Cは発光デバイスの概略図である。

図2Aおよび図2Bはアクティブマトリクス型発光装置の概念図である。

図3Aおよび図3Bはアクティブマトリクス型発光装置の概念図である。

図4はアクティブマトリクス型発光装置の概念図である。

図5Aおよび図5Bはパッシブマトリクス型発光装置の概念図である。

図6Aおよび図6Bは照明装置を表す図である。

図7A、図7B1、図7B2および図7Cは電子機器を表す図である。

図8A、図8Bおよび図8Cは電子機器を表す図である。

図9は照明装置を表す図である。

図10は照明装置を表す図である。

図11は車載表示装置及び照明装置を表す図である。

図12Aおよび図12Bは電子機器を表す図である。

図13A、図13Bおよび図13Cは電子機器を表す図である。

図14Aおよび図14BはoFBiBnf (6) の¹H NMRチャートである。

図15はoFBiBnf (6) のトルエン溶液における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図16はoFBiBnf (6) の薄膜状態における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図17Aおよび図17BはoFBi (4) Bnf (6) の¹H NMRチャートである。

図18はoFBi (4) Bnf (6) のトルエン溶液における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図19はoFBi (4) Bnf (6) の薄膜状態における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

- 図20Aおよび図20BはF B i (4) B n f (6) の¹H NMRチャートである。
- 図21はF B i (4) B n f (6) のトルエン溶液における吸収スペクトルと発光スペクトルである。
- 図22はF B i (4) B n f (6) の薄膜状態における吸収スペクトルと発光スペクトルである。
- 図23Aおよび図23BはF B i B n f (6) の¹H NMRチャートである。
- 図24はF B i B n f (6) のトルエン溶液における吸収スペクトルと発光スペクトルである。
- 図25はF B i B n f (6) の薄膜状態における吸収スペクトルと発光スペクトルである。
- 図26は発光デバイス1及び比較発光デバイス1の輝度－電流密度特性である。
- 図27は発光デバイス1及び比較発光デバイス1の電流効率－輝度特性である。
- 図28は発光デバイス1及び比較発光デバイス1の輝度－電圧特性である。
- 図29は発光デバイス1及び比較発光デバイス1の電流－電圧特性である。
- 図30は発光デバイス1及び比較発光デバイス1の外部量子効率－輝度特性である。
- 図31は発光デバイス1及び比較発光デバイス1の発光スペクトルである。
- 図32は発光デバイス2及び比較発光デバイス2の輝度－電流密度特性である。
- 図33は発光デバイス2及び比較発光デバイス2の電流効率－輝度特性である。
- 図34は発光デバイス2及び比較発光デバイス2の輝度－電圧特性である。
- 図35は発光デバイス2及び比較発光デバイス2の電流－電圧特性である。
- 図36は発光デバイス2及び比較発光デバイス2の外部量子効率－輝度特性である。
- 図37は発光デバイス2及び比較発光デバイス2の発光スペクトルである。
- 図38は発光デバイス1及び比較発光デバイス1の規格化輝度－時間変化特性である。
- 図39は発光デバイス2及び比較発光デバイス2の規格化輝度－時間変化特性である。
- 図40は発光デバイス3及び比較発光デバイス3の輝度－電流密度特性である。
- 図41は発光デバイス3及び比較発光デバイス3の電流効率－輝度特性である。
- 図42は発光デバイス3及び比較発光デバイス3の輝度－電圧特性である。
- 図43は発光デバイス3及び比較発光デバイス3の電流－電圧特性である。
- 図44は発光デバイス3及び比較発光デバイス3の外部量子効率－輝度特性である。
- 図45は発光デバイス3及び比較発光デバイス3の発光スペクトルである。
- 図46は発光デバイス4及び比較発光デバイス4の輝度－電流密度特性である。
- 図47は発光デバイス4及び比較発光デバイス4の電流効率－輝度特性である。
- 図48は発光デバイス4及び比較発光デバイス4の輝度－電圧特性である。
- 図49は発光デバイス4及び比較発光デバイス4の電流－電圧特性である。
- 図50は発光デバイス4及び比較発光デバイス4の外部量子効率－輝度特性である。
- 図51は発光デバイス4及び比較発光デバイス4の発光スペクトルである。
- 図52は発光デバイス3及び比較発光デバイス3の規格化輝度－時間変化特性である。
- 図53は発光デバイス4及び比較発光デバイス4の規格化輝度－時間変化特性である。
- 図54は発光デバイス5及び発光デバイス6の輝度－電流密度特性である。
- 図55は発光デバイス5及び発光デバイス6の電流効率－輝度特性である。
- 図56は発光デバイス5及び発光デバイス6の輝度－電圧特性である。
- 図57は発光デバイス5及び発光デバイス6の電流－電圧特性である。
- 図58は発光デバイス5及び発光デバイス6の外部量子効率－輝度特性である。
- 図59は発光デバイス5及び発光デバイス6の発光スペクトルである。

図60Aおよび図60BはFBiBnf (8) の¹H NMRチャートである。

図61はFBiBnf (8) のトルエン溶液における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図62はFBiBnf (8) の薄膜状態における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図63Aおよび図63BはoFBiBnf (8) の¹H NMRチャートである。

図64はoFBiBnf (8) のトルエン溶液における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図65はoFBiBnf (8) の薄膜状態における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図66Aおよび図66BはFBi (4) Bnf (8) の¹H NMRチャートである。

図67はFBi (4) Bnf (8) のトルエン溶液における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図68はFBi (4) Bnf (8) の薄膜状態における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図69はoFBi (4) Bnf (8) のトルエン溶液における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図70はoFBi (4) Bnf (8) の薄膜状態における吸収スペクトルと発光スペクトルである。

図71は発光デバイス7及び発光デバイス8の輝度－電流密度特性である。

図72は発光デバイス7及び発光デバイス8の電流効率－輝度特性である。

図73は発光デバイス7及び発光デバイス8の輝度－電圧特性である。

図74は発光デバイス7及び発光デバイス8の電流－電圧特性である。

図75は発光デバイス7及び発光デバイス8の外部量子効率－輝度特性である。

図76は発光デバイス7及び発光デバイス8の発光スペクトルである。

図77は発光デバイス7及び発光デバイス8の規格化輝度－時間変化特性である。

図78は発光デバイス9及び比較発光デバイス5の輝度－電流密度特性である。

図79は発光デバイス9及び比較発光デバイス5の電流効率－輝度特性である。

図80は発光デバイス9及び比較発光デバイス5の輝度－電圧特性である。

図81は発光デバイス9及び比較発光デバイス5の電流－電圧特性である。

図82は発光デバイス9及び比較発光デバイス5の外部量子効率－輝度特性である。

図83は発光デバイス9及び比較発光デバイス5の発光スペクトルである。

図84は発光デバイス9及び比較発光デバイス5の規格化輝度－時間変化特性である。

図85は発光デバイス10の輝度－電流密度特性である。

図86は発光デバイス10の電流効率－輝度特性である。

図87は発光デバイス10の輝度－電圧特性である。

図88は発光デバイス10の電流－電圧特性である。

図89は発光デバイス10の外部量子効率－輝度特性である。

図90は発光デバイス10の発光スペクトルである。

発明を実施するための形態

[0049]

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は当業者であれば容易に理解される。従って、本発明は以下に示す実施の形態の記載内容に限定して解釈されるものではない。

[0050]

(実施の形態1)

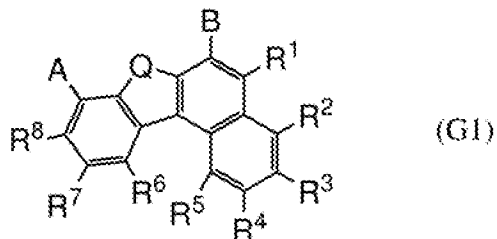
本実施の形態では、本発明の一態様の有機化合物について説明する。

$$[0\ 0\ 5\ 1]$$

本発明の一態様の有機化合物は、下記一般式（G 1）で表される有機化合物である。

 $[0\ 0\ 5\ 2]$

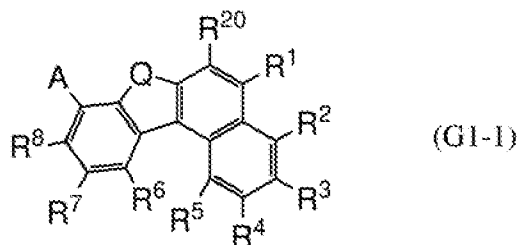
[化 1 0]

 $[0\ 0\ 5\ 3]$

上記一般式 (G 1) は、下記一般式 (G 1-1) および一般式 (G 1-2) として表すこともできる。

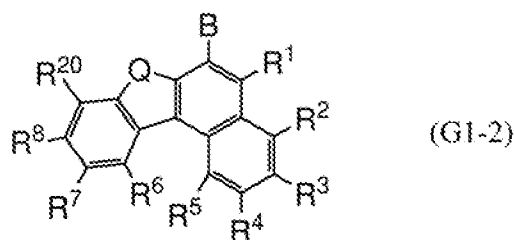
 $[0\ 0\ 5\ 4]$

[化 1 1]



[0 0 5 5]

[化 1 2]



[0 0 5 6]

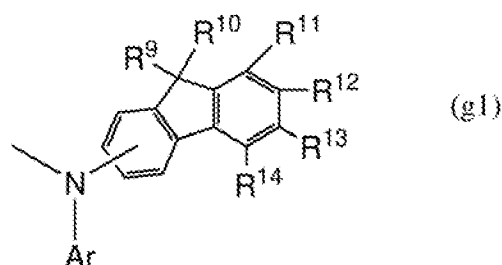
なお、上記一般式（G 1）、一般式（G 1－1）および一般式（G 1－2）で表される有機化合物において、Qは酸素原子または硫黄原子である。なお、Qは酸素原子であると、硫黄原子を有する化合物に比べて屈折率が低くなり、より屈折率が低い化合物を用いた素子は光取り出し効率が高くなる効果が得られ、高効率の発光デバイスを提供できるため好ましい。

[0 0 5 7]

また、上記一般式 (G 1) における、A および B の一方、上記一般式 (G 1-1) における A、上記一般式 (G 1-2) における B は、下記一般式 (g 1) で表される基であるものとする。

[0058]

[化 1 3]

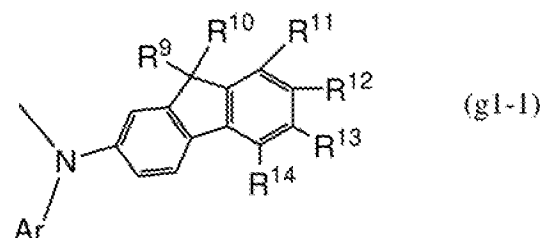


[0059]

上記一般式 (g 1) で表される基において、フルオレニル基にアミンの窒素が結合する位置は、2位または4位が好ましい。すなわち、上記一般式 (g 1) で表される基は、下記一般式 (g 1-1) で表される基である場合は、フルオレン-2-アミン骨格を有する化合物となるためHOMOが比較的浅く高い輸送性の化合物を提供でき、その結果低消費電力の発光デバイスを提供できる。また下記一般式 (g 1-1) で表される基である場合は、合成がしやすくコスト面でのメリットも得られる。または上記一般式 (g 1) は下記一般式 (g 1-2) で表される基であると、高い発光効率を有するデバイスを提供することができるため好ましい。

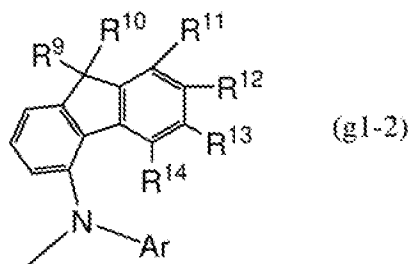
[0060]

[化14]



[0061]

[化15]

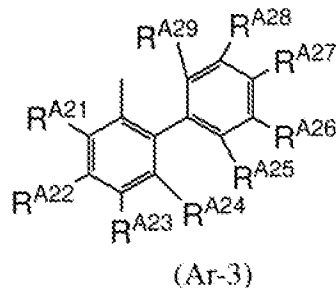
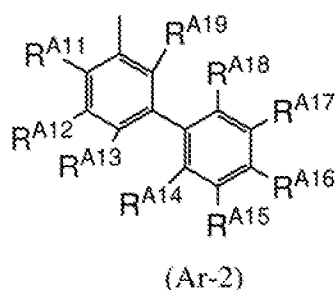
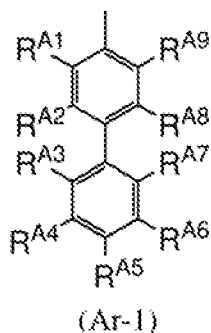


[0062]

上記一般式 (g 1)、一般式 (g 1-1) および一般式 (g 1-2) で表される基において、Arは置換または無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。なお、Arは、下記一般式 (Ar-1) 乃至 (Ar-3) で表される基であることが高効率、高信頼性のデバイスを提供するためには好ましい。また、一般式 (g 1-2) のArが下記一般式 (Ar-1) 乃至 (Ar-3) で表される基である場合、合成しやすく化合物を提供するうえでコスト面でのメリットも得られる。

[0063]

[化16]



[0064]

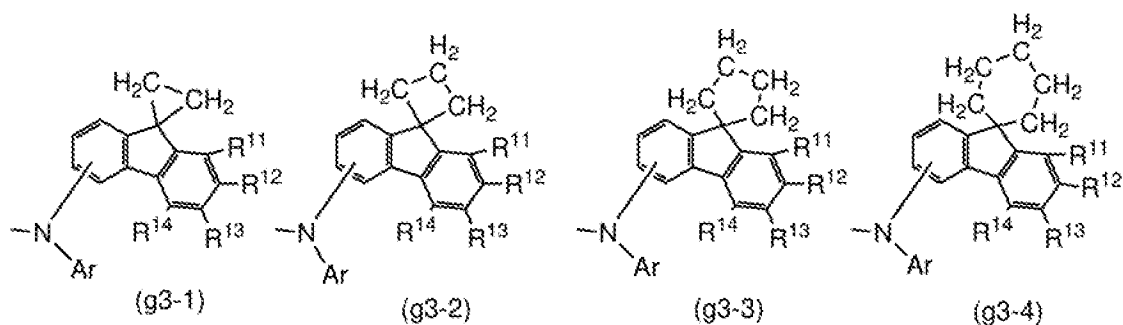
ただし、上記一般式 (Ar-1) 乃至 (Ar-3) において、 R^{A1} 乃至 R^{A9} 、 R^{A11} 乃至 R^{A19} および R^{A21} 乃至 R^{A29} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。なお、 R^{A1} 乃至 R^{A9} 、 R^{A11} 乃至 R^{A19} および R^{A21} 乃至 R^{A29} は水素、フェニル基、ビフェニル基、フルオレニル基であることが、合成が簡便であること、および原料の調達が容易であること、高耐熱性、高信頼性、低消費電力の化合物およびデバイスを提供できるため好ましい。

[0065]

また、上記一般式 (g1)、一般式 (g1-1) および一般式 (g1-2) で表される基において、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表す。なお、 R^9 および R^{10} が炭素数 1 乃至 6 のアルキル基の場合、下記一般式 (g3-1) 乃至一般式 (g3-4) のように、 R^9 と R^{10} は互いに結合して環を形成し、スピロ構造となってもよい。

[0066]

[化17]



[0067]

また、上記一般式 (G1)、一般式 (G1-1)、一般式 (G1-2)、一般式 (g1)、一般式 (g1-1) および一般式 (g1-2) で表される基において、A および B の他方、 R^1 乃至 R^8 、 R^{11} 乃至 R^{14} 、および R^{20} はそれぞれ独立に、水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。

[0068]

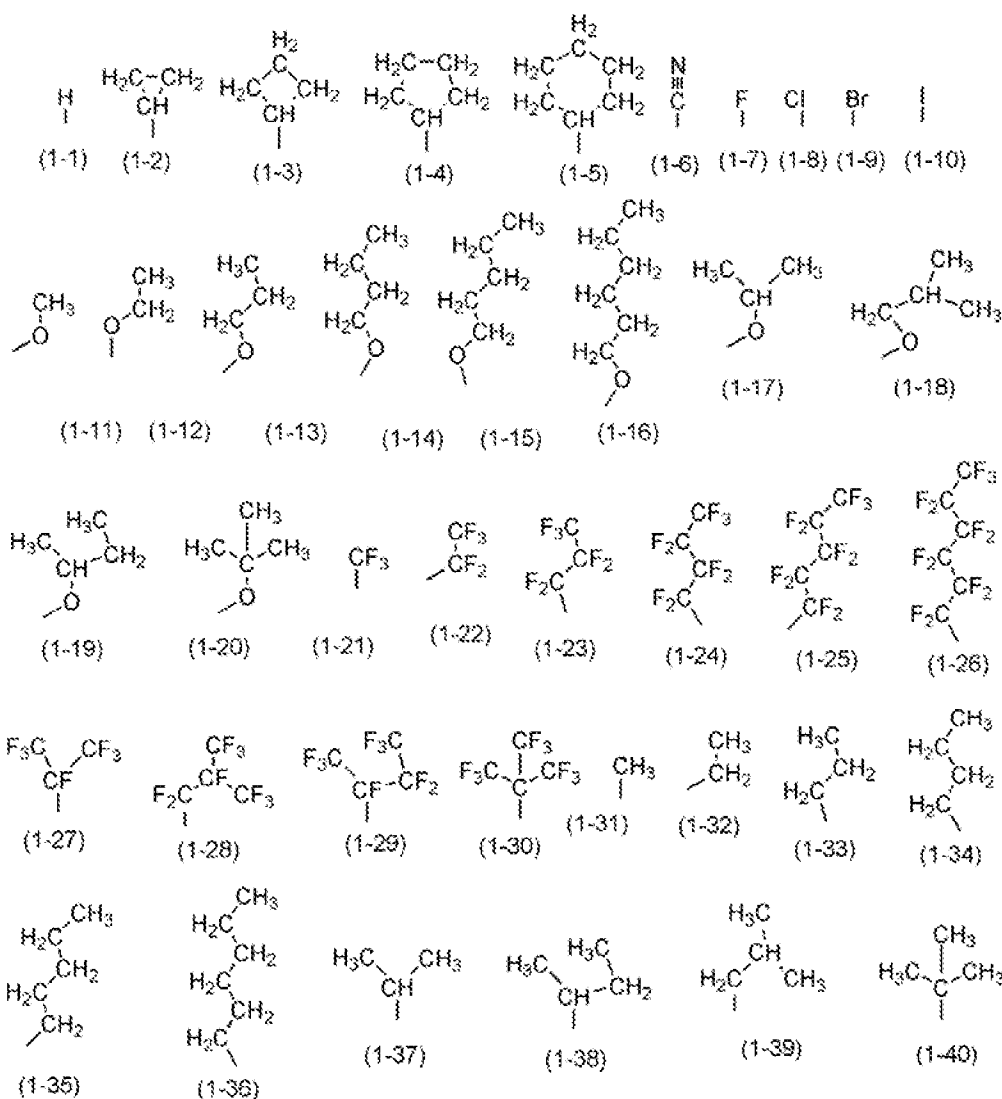
なお、本明細書中において、置換または無置換の」と述べた基が置換基を有する場合、当該置換基としては、炭素数1乃至6のアルキル基、フェニル基、ビフェニル基（*o*-ビフェニル基、*m*-ビフェニル基および*p*-ビフェニル基）、ナフチル基を挙げることができる。

[0069]

また、炭素数1乃至6の炭化水素基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基の具体的な例としては、下記構造式（1-1）乃至構造式（1-40）のようなものを挙げることができる。

[0070]

[化18]

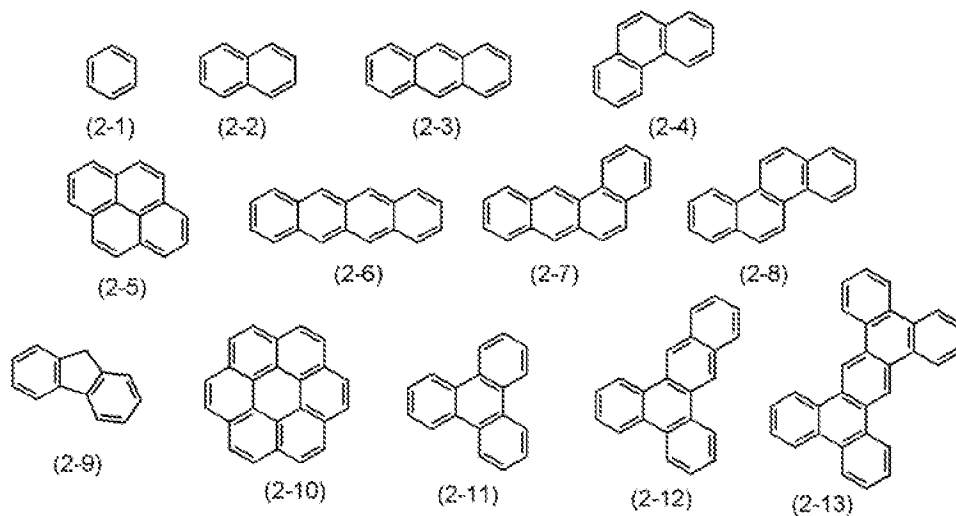


[0071]

また、炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基としては具体的には例えば、下記構造式（2-1）乃至（2-13）等で表される置換基を挙げることができる。なお、下記構造式（2-1）乃至（2-13）の置換位置は問わない。また、これらは置換基を有していても良い。

[0072]

[化19]

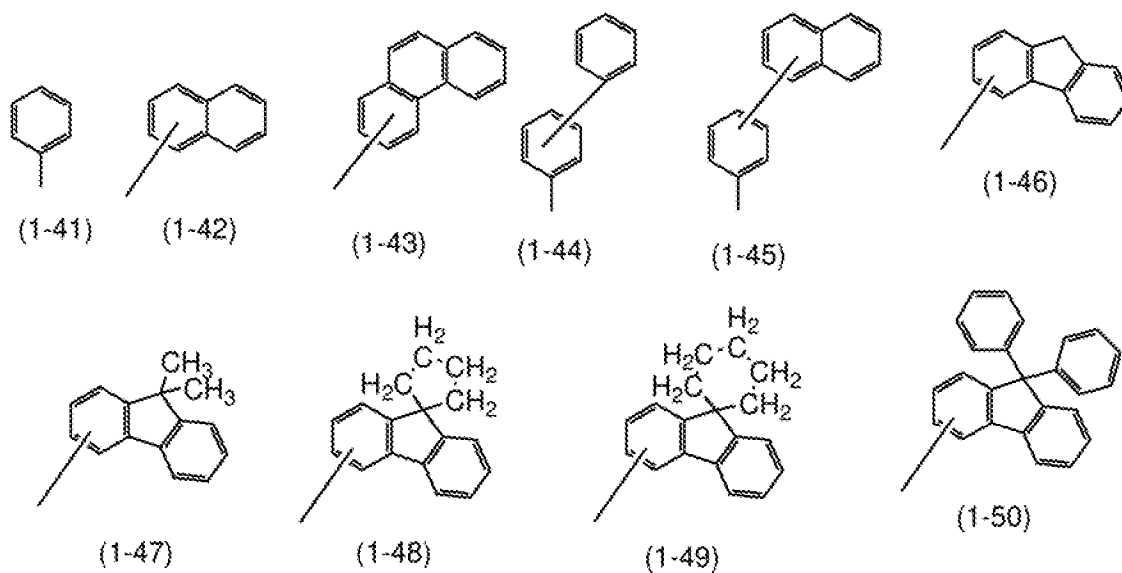


[0 0 7 3]

なお、 R^1 乃至 R^8 、 R^{11} 乃至 R^{14} が芳香族炭化水素基である場合は、上記構造式下記構造式(2-1)乃至(2-13)のうち、構造式(2-1)乃至構造式(2-3)および構造式(2-9)であることが好ましい。また、それらの芳香族炭化水素基の置換位置は問わない。このような芳香族炭化水素基および、このような炭化水素基が置換基を有する場合の具体的な例を下記構造式(1-41)乃至構造式(1-50)に示す。

[0 0 7 4]

[化20]

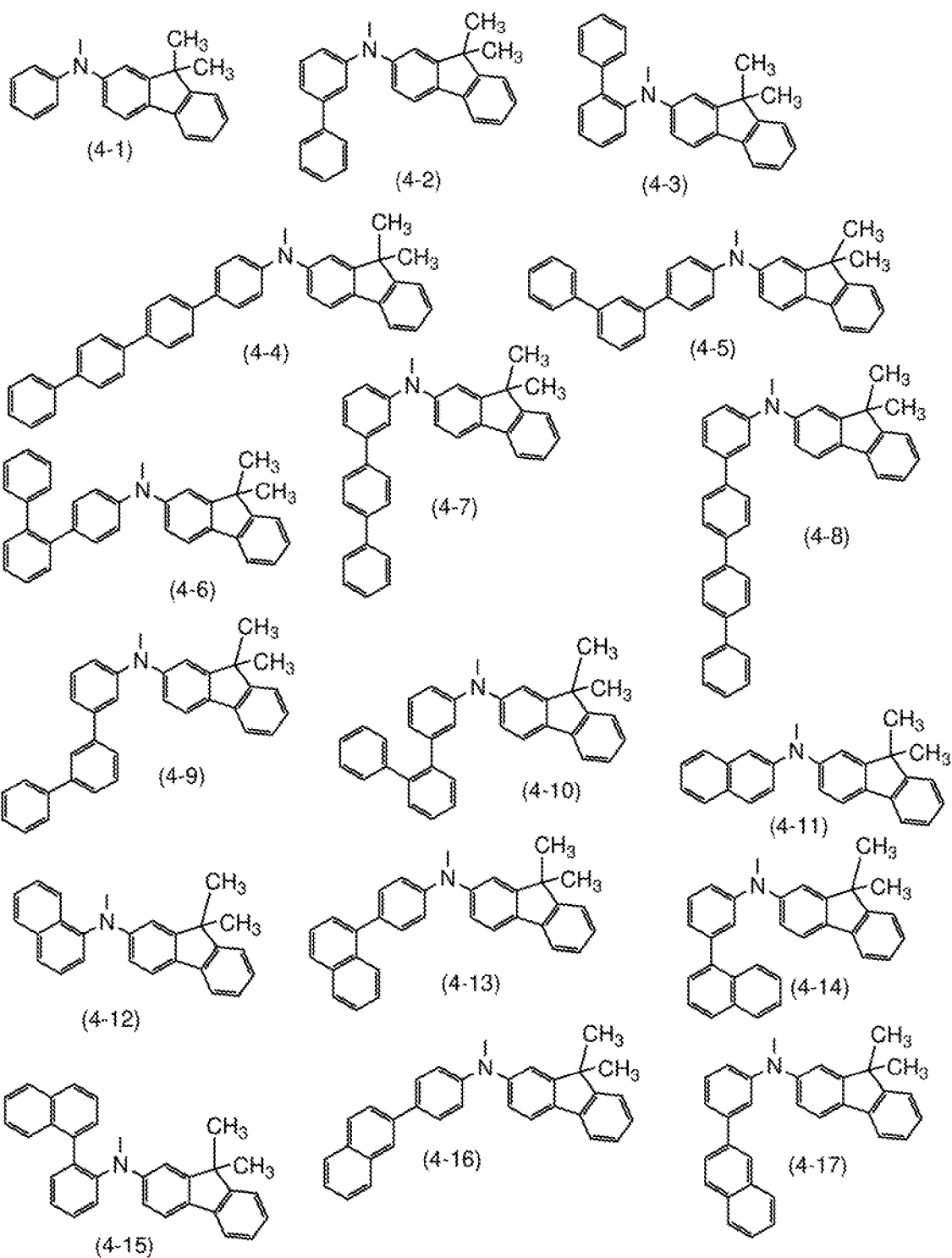


[0 0 7 5]

ここで、上記一般式(g1)、一般式(g1-1)、一般式(g1-2)および一般式(g3-1)乃至一般式(g3-4)で表される基の具体的な例を以下に示す。

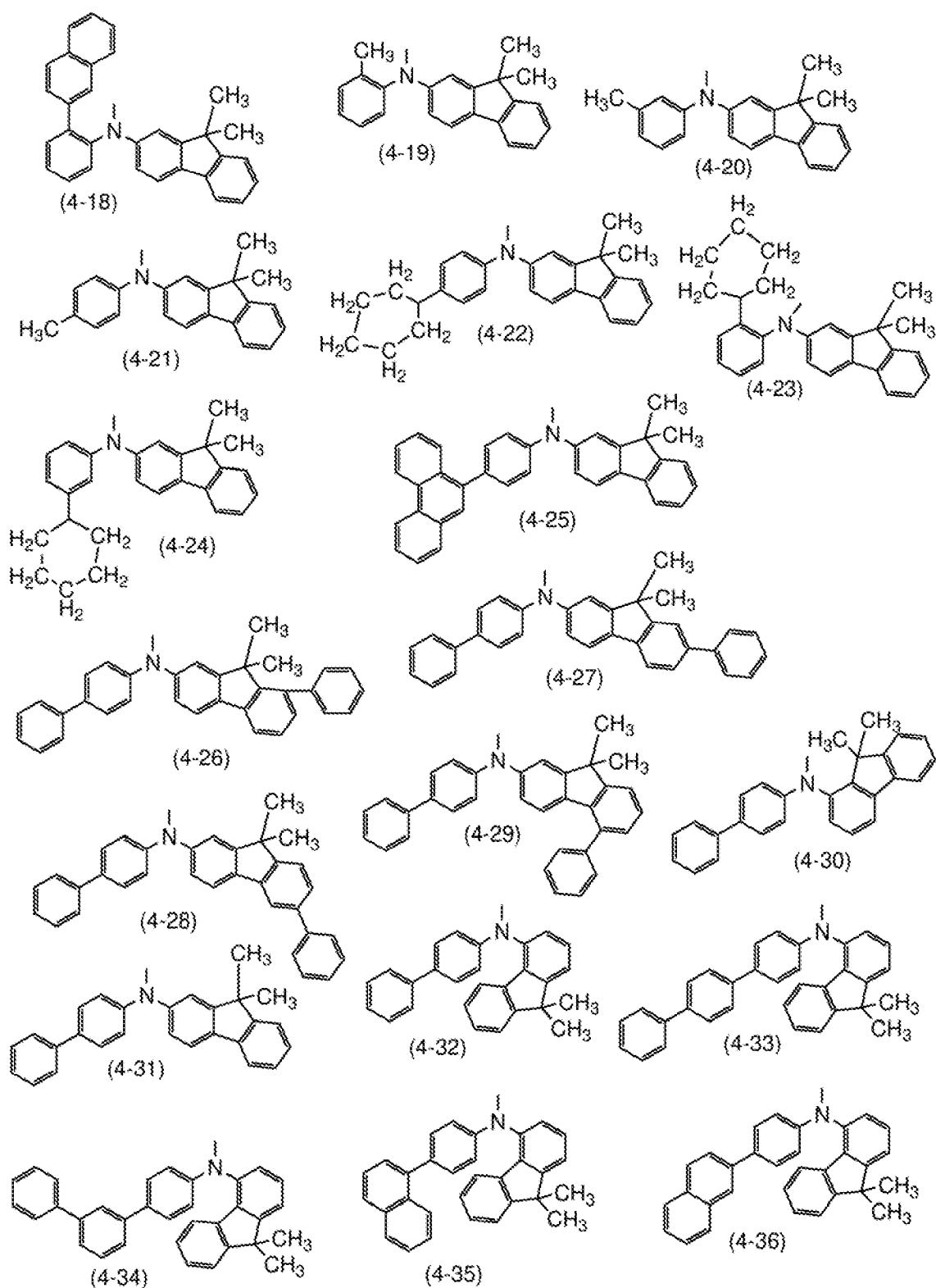
[0 0 7 6]

[化21]



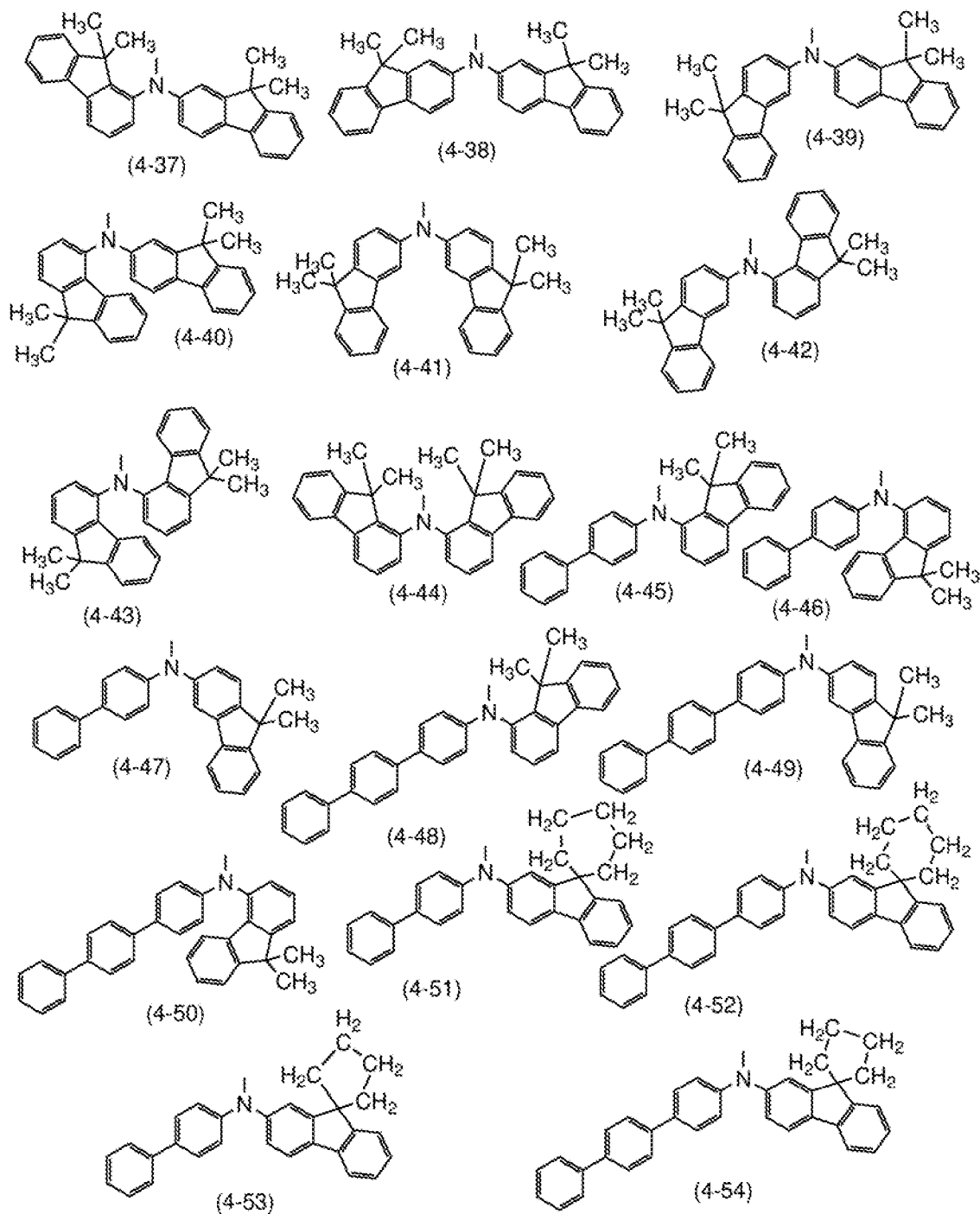
[0 0 7 7]

[化 2 2]



[0 0 7 8]

[化 2 3]



[0 0 7 9]

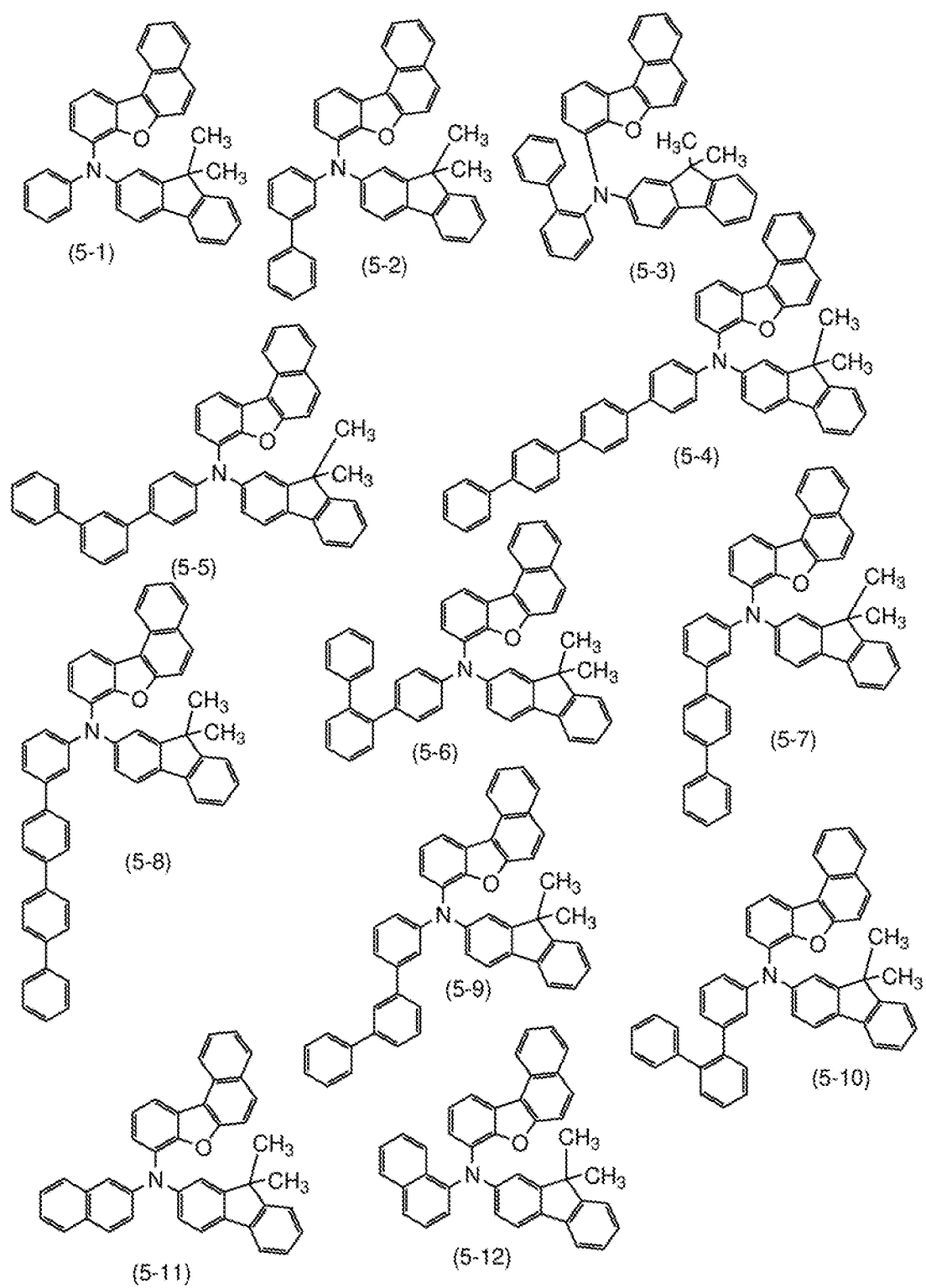
以上のような構成を有する本発明の一態様の有機化合物は、キャリア輸送性の高い有機化合物である。特に、正孔輸送性が高く、厚膜として形成しても、駆動電圧の上昇が少なく、良好な特性の発光デバイスを得ることができる。上記構成を有する有機化合物は、発光デバイスの正孔注入層および正孔輸送層として好適に用いることができる。

[0 0 8 0]

上記構成を有する有機化合物の具体的な例を以下に示す。

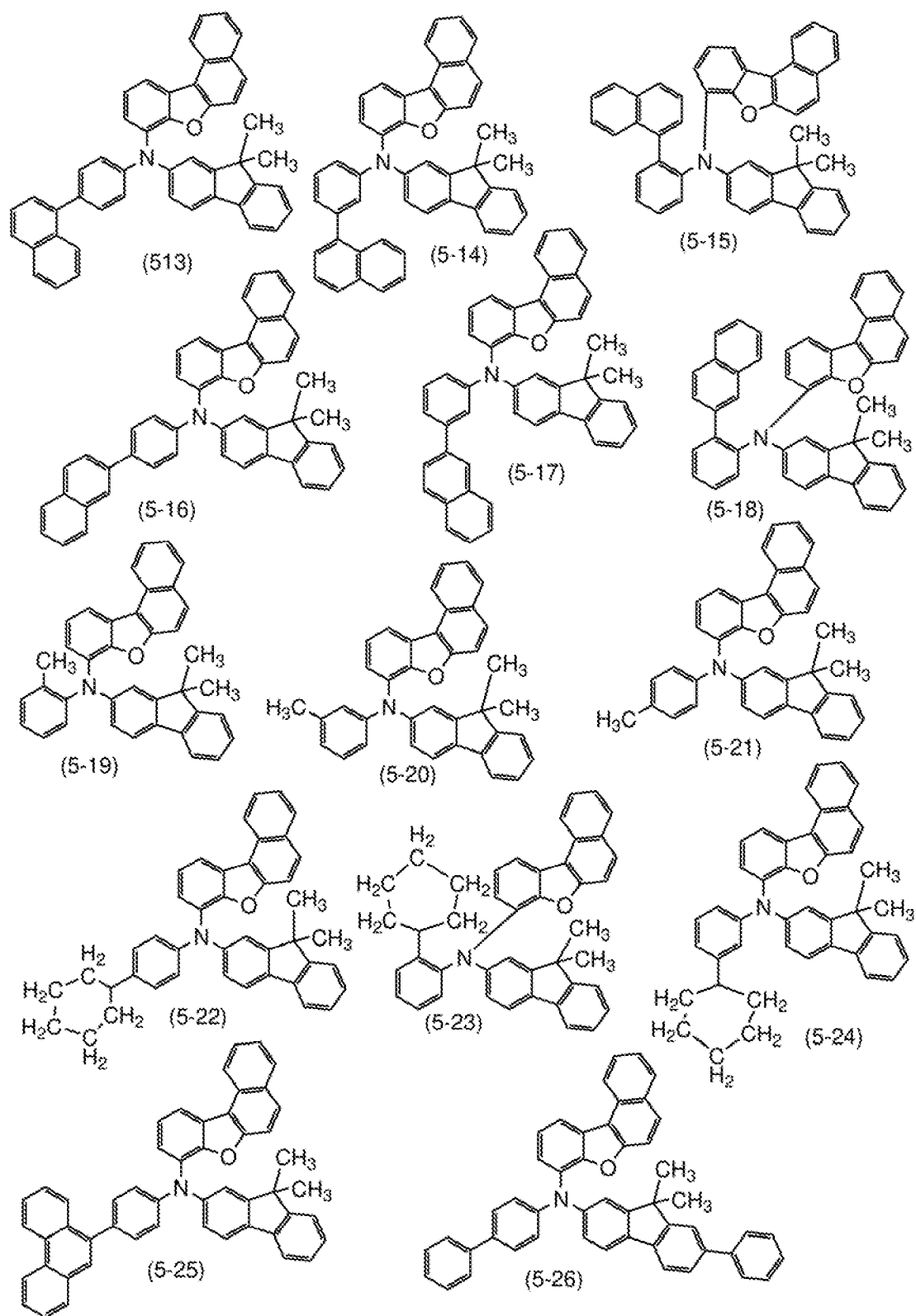
[0 0 8 1]

[化 2 4]



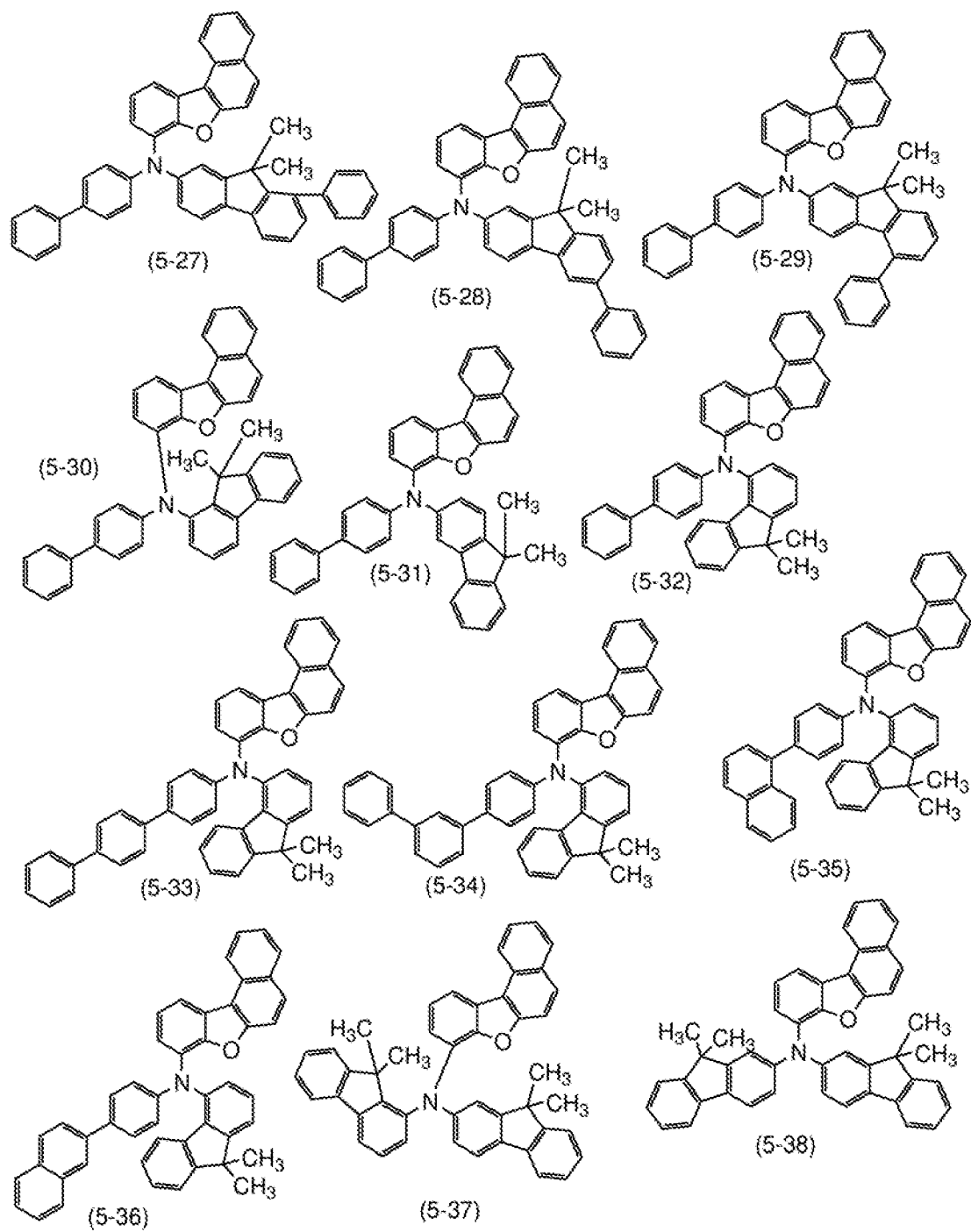
[0 0 8 2]

[化 2 5]



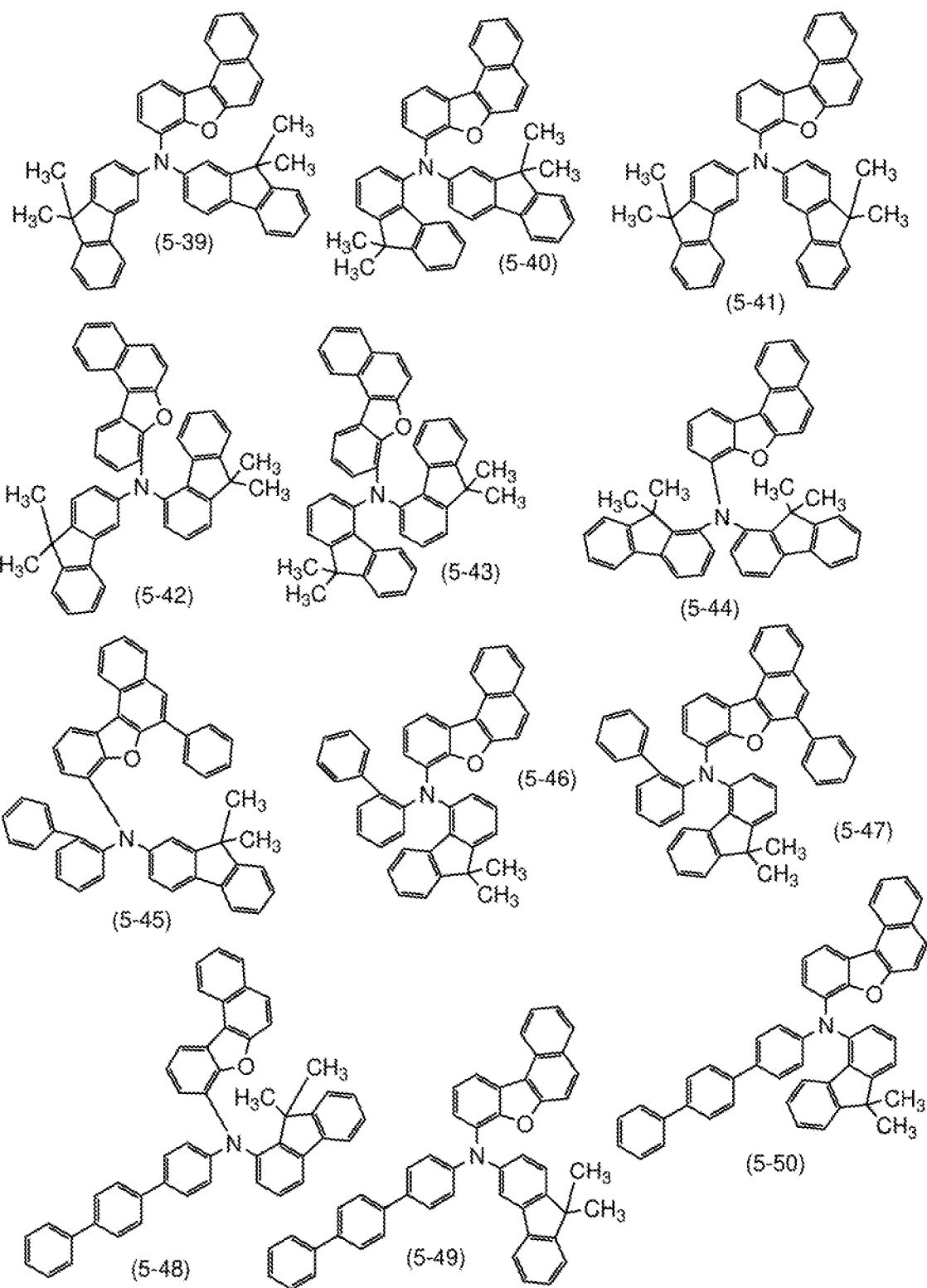
[0 0 8 3]

[化 2 6]



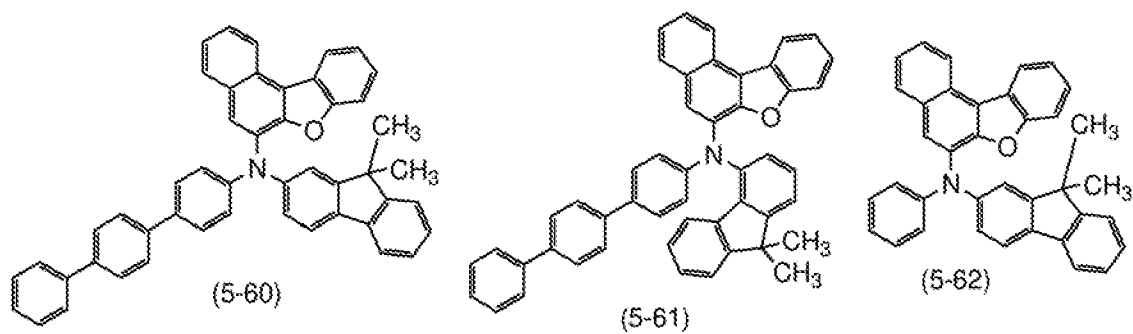
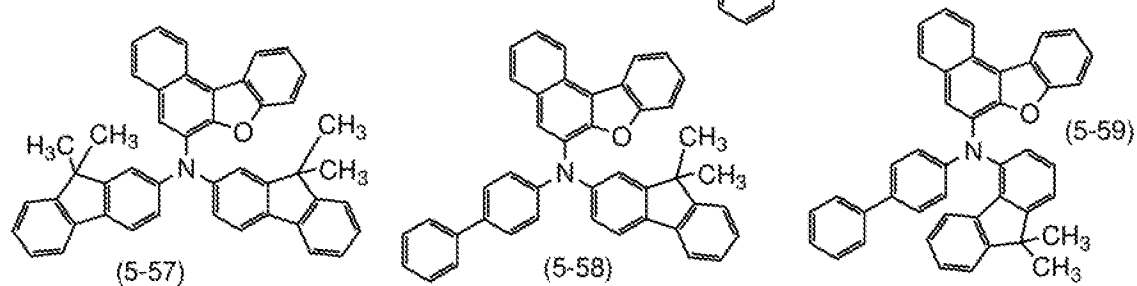
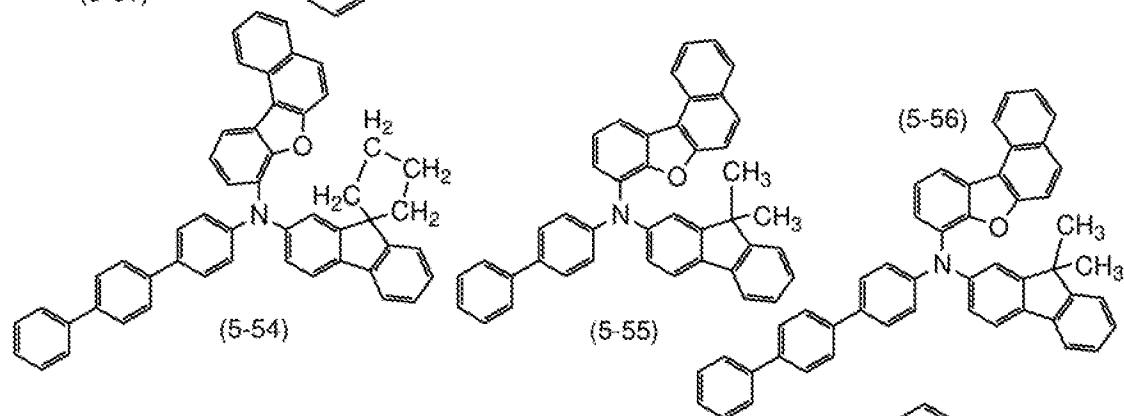
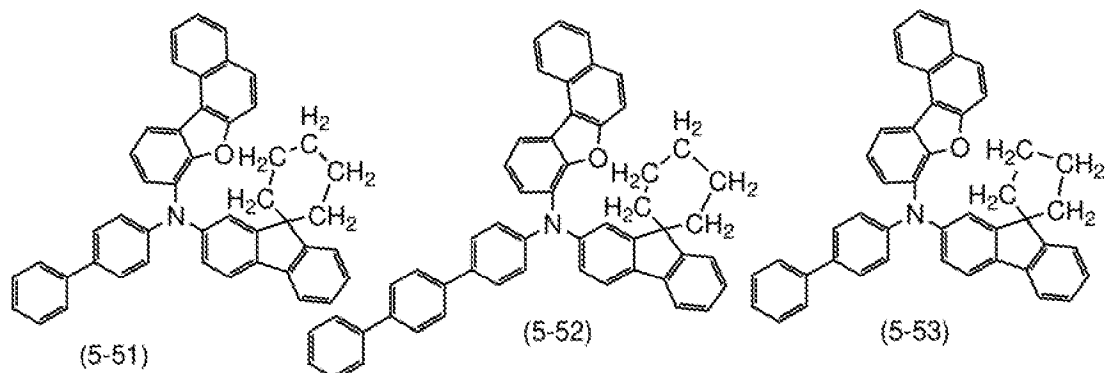
[0 0 8 4]

[化 2 7]



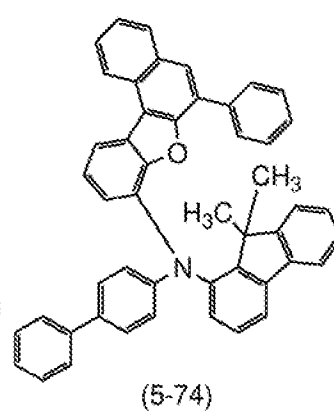
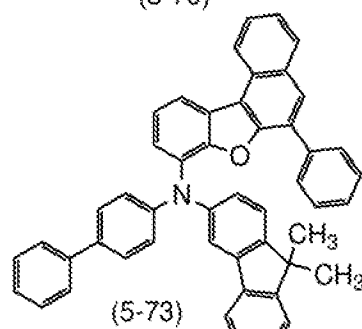
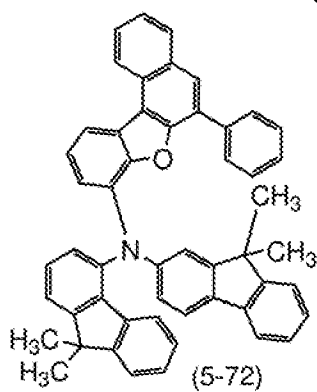
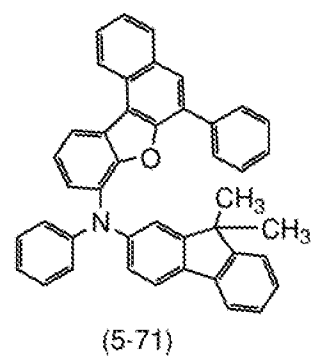
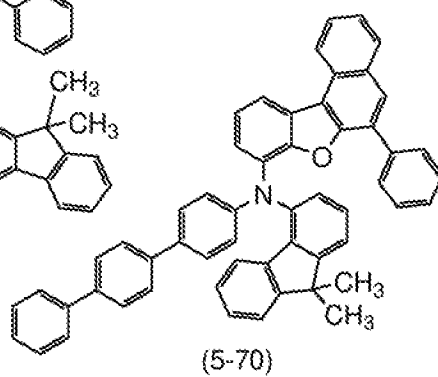
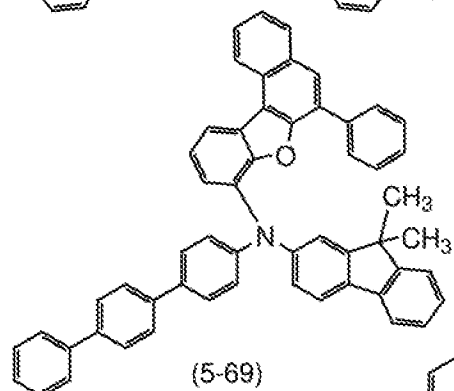
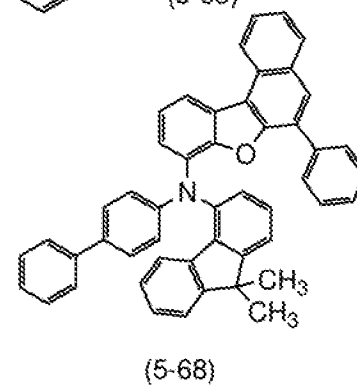
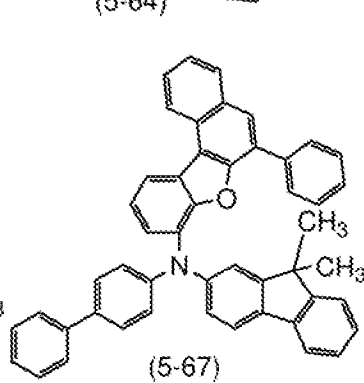
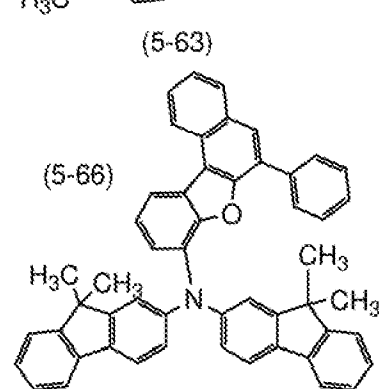
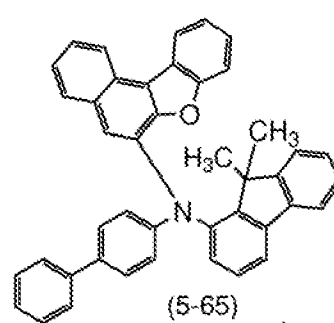
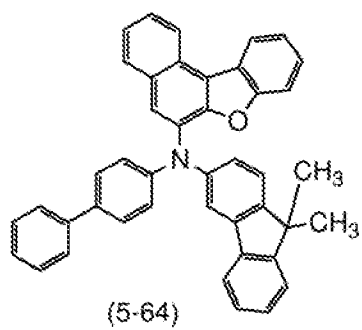
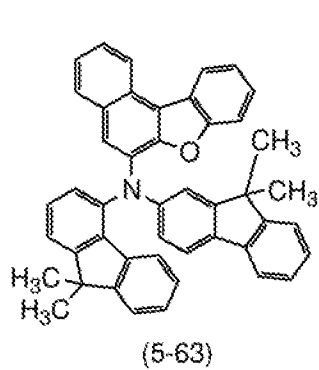
[0 0 8 5]

[化 2 8]



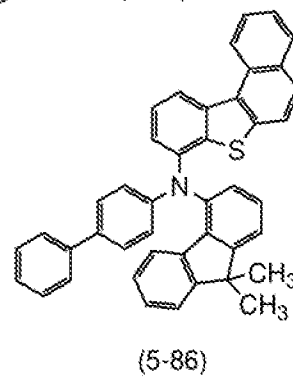
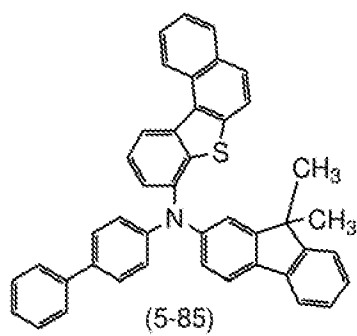
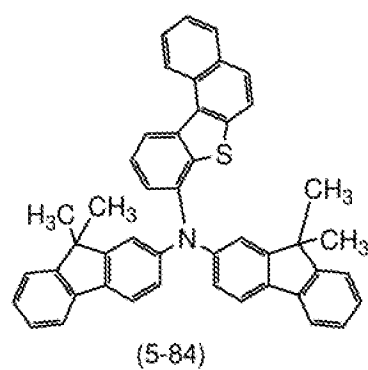
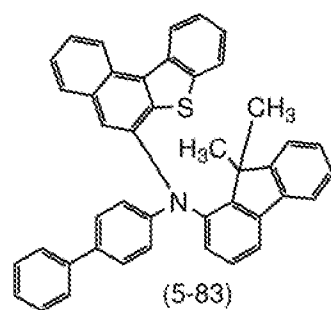
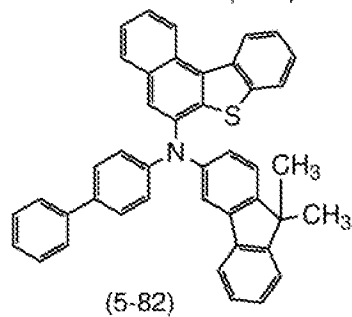
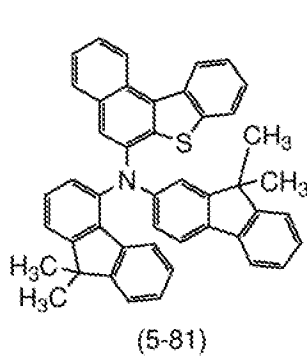
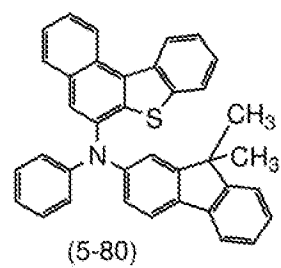
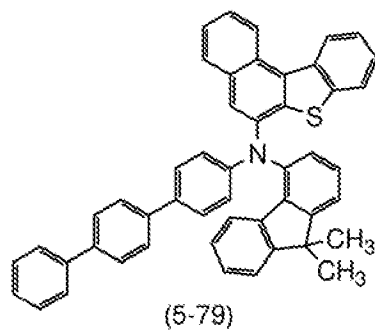
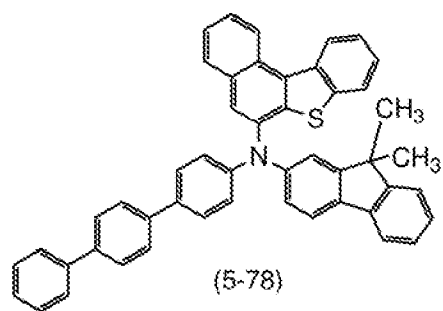
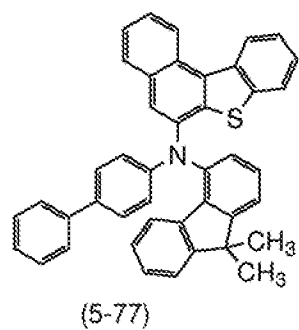
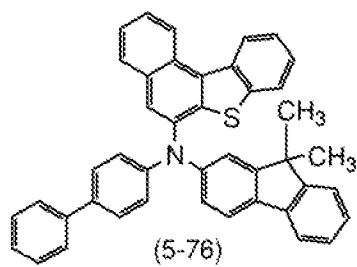
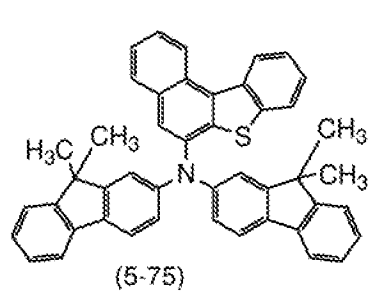
[0 0 8 6]

[化 2 9]



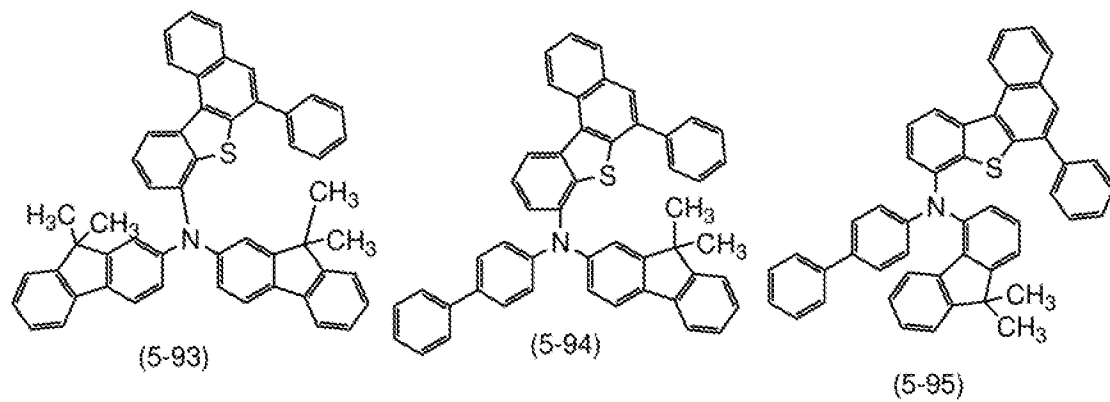
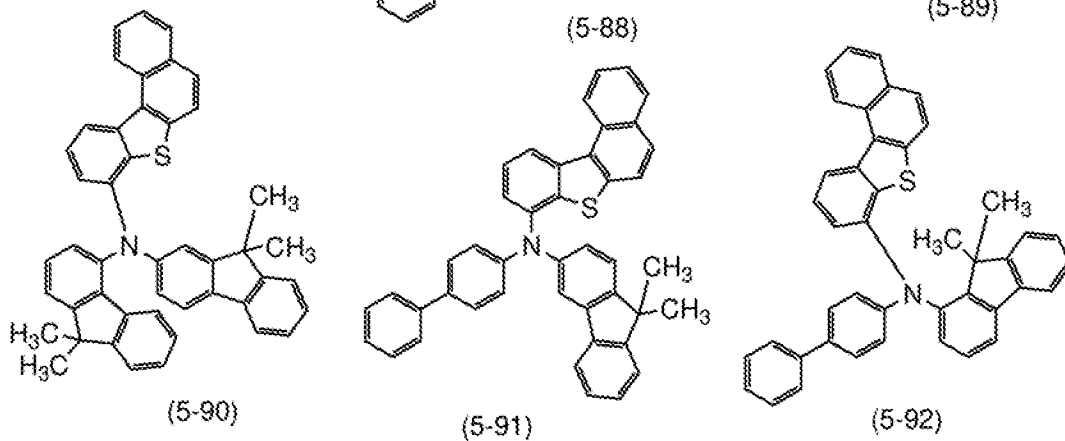
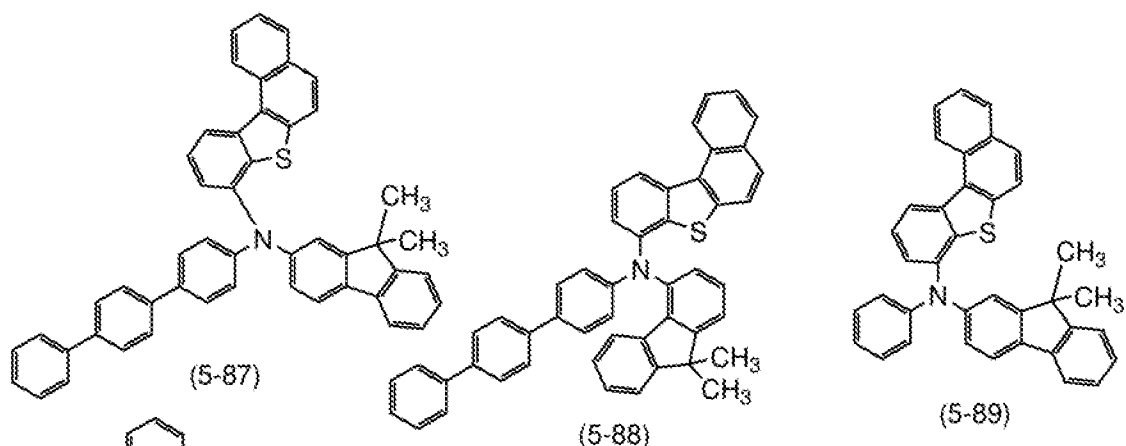
[0 0 8 7]

[化 3 0]



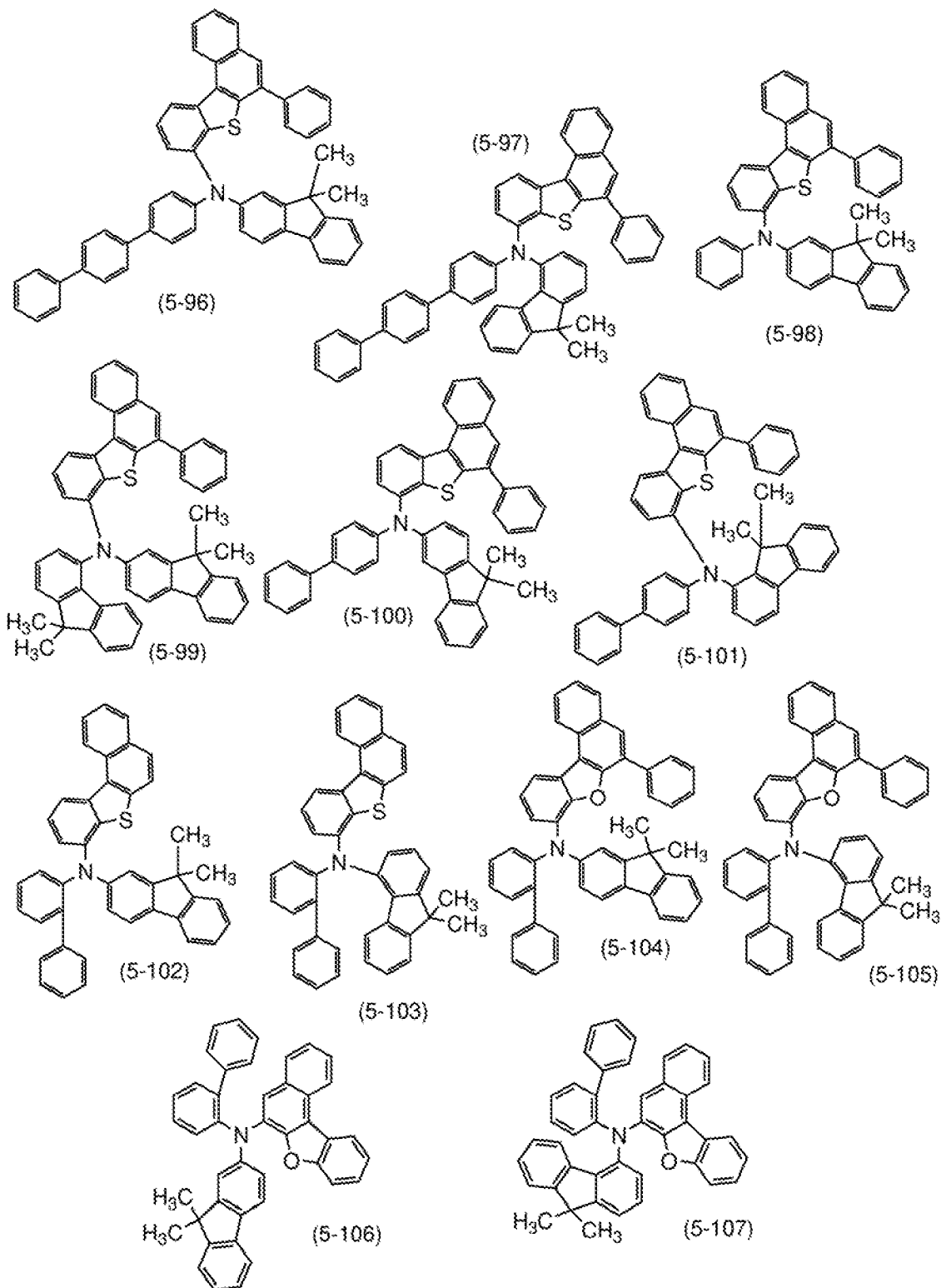
[0 0 8 8]

[化 3 1]



[0 0 8 9]

[化 3 2]

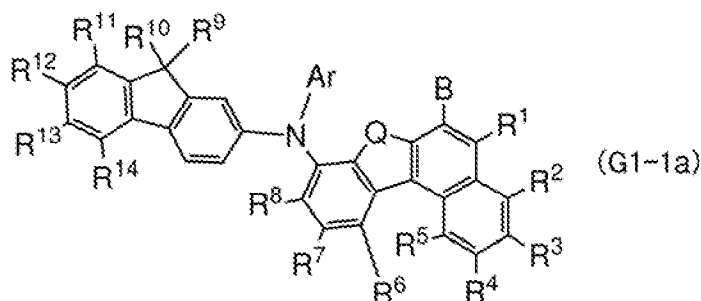


[0090]

続いて、以上のような有機化合物を合成する方法について、下記一般式 (G 1-1 a) で表される有機化合物を例に説明する。一般式 (G 1-1 a) は、前記一般式 (G 1) において、A が一般式 (g 1) の場合で且つ、(g 1) の分子構造がフルオレン-2-アミンである分子構造である。

[0091]

[化 33]



[0092]

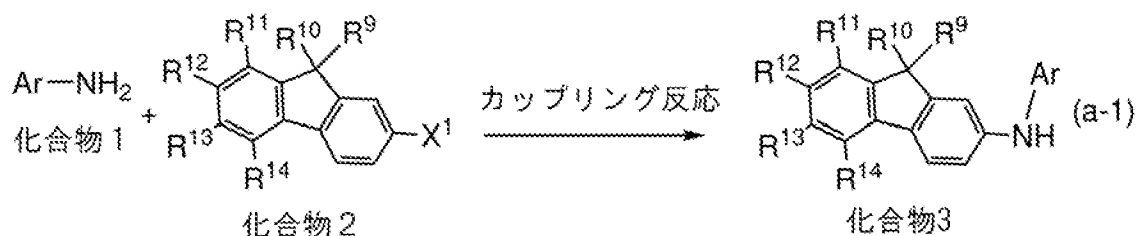
一般式 (G1-1a) で表される有機化合物は、下記合成スキーム (a-1) および (a-2) のように合成することができる。

[0093]

まず、反応式 (a-1) に従ってアリールアミン化合物 (化合物1) とフルオレン化合物 (化合物2) とをカップリングすることにより、フルオレニルアミン化合物 (化合物3) を得ることが出来る。次に、反応式 (a-2) に従って、フルオレニルアミン化合物 (化合物3) とベンゾナフトフラン化合物 (化合物4) と、をカップリングすることにより、目的のベンゾナフトフラニルアミン化合物 (G1-1a) を得ることができる。以下に、合成スキーム (a-1) および (a-2) を示す。

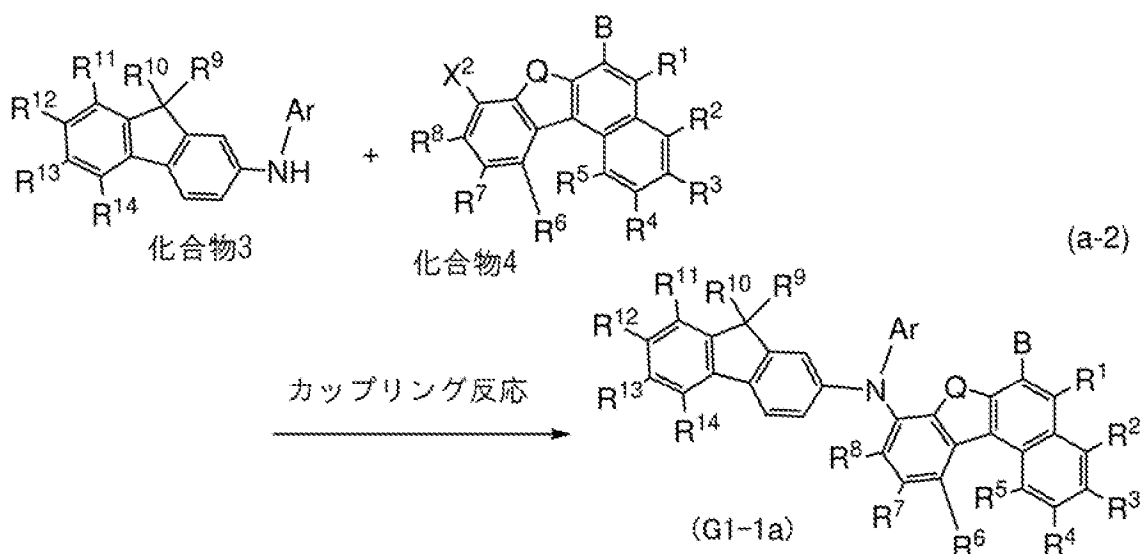
[0094]

[化34]



[0095]

[化35]



[0096]

合成スキーム (a-1) および (a-2) において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、B

および R^1 乃至 R^8 および R^{11} 乃至 R^{14} は、水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、Arは置換または無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。

[0097]

また、合成スキーム(a-1)および(a-2)において、 X^1 乃至 X^2 はそれぞれ独立に塩素、臭素、ヨウ素、トリフラート基を表す。

[0098]

合成スキーム(a-1)乃至(a-2)において、パラジウム触媒を用いたブッフバルト・ハートウィッグ反応を行う場合、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)、酢酸パラジウム(II)、[1, 1-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]パラジウム(II)ジクロリド、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)、アリルパラジウム(II)クロリド(ダイマー)等のパラジウム化合物と、トリ(tert-ブチル)ホスフィン、トリ(n-ヘキシル)ホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、ジ(1-アダマンチル)-n-ブチルホスフィン、2-ジシクロヘキシルホスフィノー2', 6'-ジメトキシビフェニル、トリ(オルトトリル)ホスフィン、(S)-6, 6'-ジメトキシビフェニル-2, 2'-ジイル)ビス(ジイソプロピルホスフィン)(略称:cBRIDP)等の配位子を用いる事ができる。当該反応では、ナトリウム tert-ブトキシド等の有機塩基や、炭酸カリウム、炭酸セシウム、炭酸ナトリウム等の無機塩基等を用いることができる。当該反応では、溶媒として、トルエン、キシレン、ベンゼン、テトラヒドロフラン、ジオキサン等を用いることができる。当該反応で用いることができる試薬類は、前記試薬類に限られるものではない。また、アミノ基に有機錫基が結合した化合物を化合物1または化合物3の代わりに用いることもできる。

[0099]

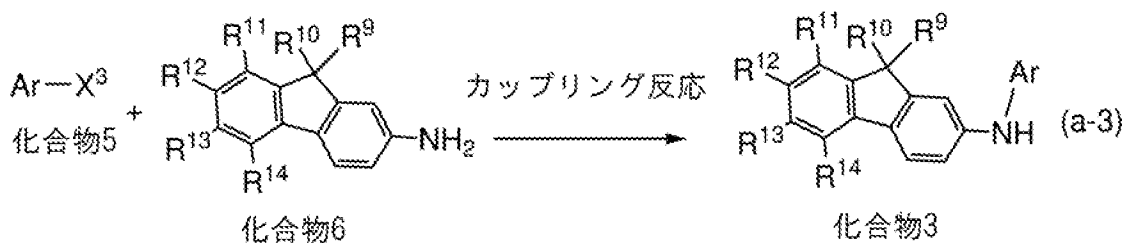
また、合成スキーム(a-1)および(a-2)において、銅、又は銅化合物を用いたウルマン反応を行うこともできる。当該反応では、銅もしくは銅化合物を用いる事できる。用いる塩基としては、炭酸カリウム等の無機塩基が挙げられる。当該反応において、用いることができる溶媒は、1, 3-ジメチル-3, 4, 5, 6-テトラヒドロ-2(1H)ピリミジノン(DMPU)、トルエン、キシレン、ベンゼン等が挙げられる。ウルマン反応では、反応温度が100℃以上の方がより短時間かつ高収率で目的物が得られるため、沸点の高いDMPU、キシレンを用いることが好ましい。また、反応温度は150℃以上のより高温が更に好ましいため、より好ましくはDMPUを用いることとする。当該反応において、用いることができる試薬類は、前記試薬類に限られるものではない。

[0100]

なお、化合物3の合成は下記合成スキーム(a-3)のようにアリール化合物(化合物5)とフルオレニルアミン化合物(化合物6)と、をカップリングすることでも行うことができる。

[0101]

[化36]



[0102]

合成スキーム (a-3) において、 R^{11} 乃至 R^{14} は、水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、Ar は置換または無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。

[0103]

合成スキーム (a-3) において、 X^3 はそれぞれ独立に塩素、臭素、ヨウ素、トリフレート基を表す。合成スキーム (a-3) においても合成スキーム (a-1) および (a-2) と同じ反応条件を用いることができる。

[0104]

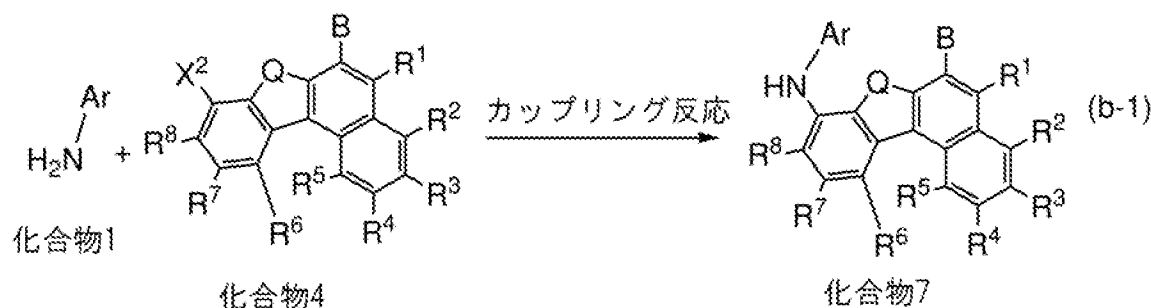
また、上記一般式 (G1-1a) で表される有機化合物は、下記合成スキーム (b-1) および (b-2) のように合成することもできる。

[0105]

まず、反応式 (b-1) 従ってアリールアミン化合物 (化合物 1) とベンゾナフトフラン化合物 (化合物 4) と、をカップリングすることにより、ベンゾナフトフラニルアミン化合物 (化合物 7) を得ることが出来る。次に、反応式 (b-2) に従って、ベンゾナフトフラニルアミン化合物 (化合物 7) とフルオレン化合物 (化合物 2) と、をカップリングすることにより、目的のベンゾナフトフラニルアミン化合物 (G1-1a) を得ることが出来る。以下に、合成スキーム (b-1) および (b-2) を示す。

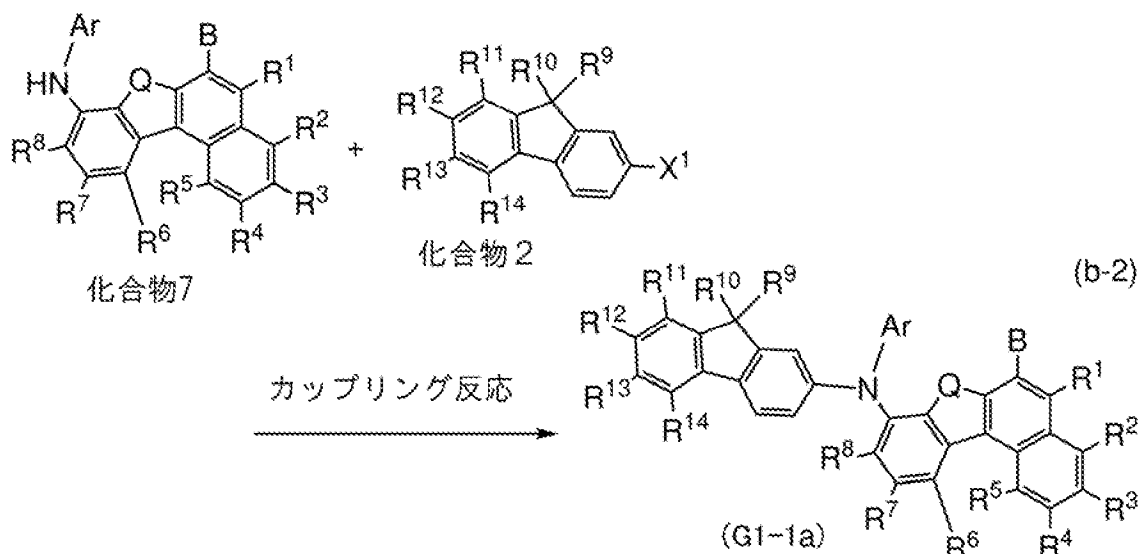
[0106]

[化37]



[0107]

[化38]



[0108]

合成スキーム (b-1) および (b-2) において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、B およびR¹乃至R⁸およびR¹¹乃至R¹⁴は、水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、R⁹およびR¹⁰はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、Arは置換または無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。

[0109]

合成スキーム (b-1) および (b-2) において、X¹乃至X²はそれぞれ独立に塩素、臭素、ヨウ素、トリフラート基を表す。

[0110]

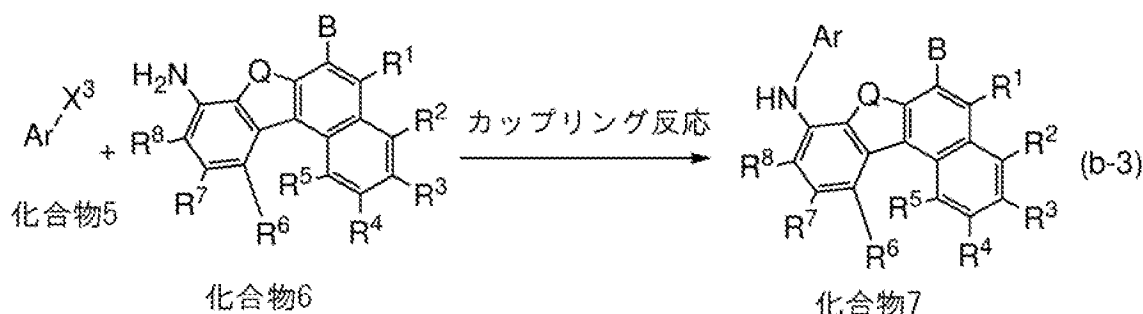
合成スキーム (b-1) および (b-2) において、パラジウム触媒を用いたブッフバルト・ハートウィッグ反応、また、銅又は銅化合物を用いたウルマン反応を行う場合、合成スキーム (a-1) および (a-2) と同じ反応条件を用いることができる。

[0111]

なお、化合物7の合成は下記合成スキーム (b-3) のようにアリール化合物 (化合物5) とベンゾナフトフラニルアミン化合物 (化合物6) と、をカップリングすることでも行うことができる。

[0112]

[化39]



[0113]

合成スキーム (b-3) において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、BおよびR¹乃至R⁸は、水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、Arは置換または無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。

[0114]

合成スキーム (b-3) において、X³はそれぞれ独立に塩素、臭素、ヨウ素、トリフラート基を表す。合成スキーム (b-3) においても合成スキーム (a-1) および (a-2) と同じ反応条件を用いることができる。

[0115]

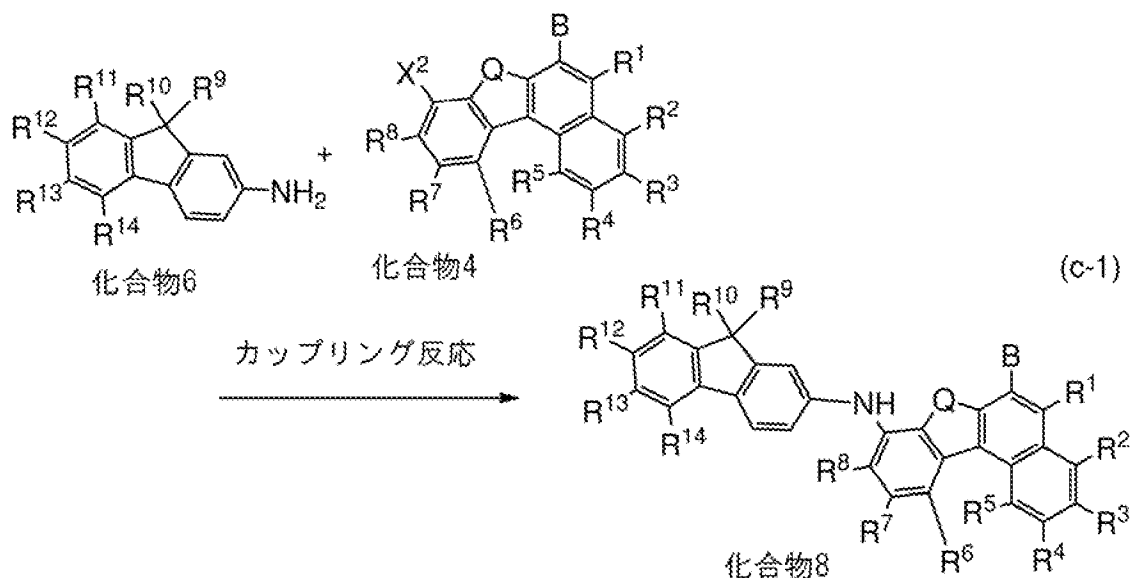
また、上記一般式 (G1-1a) で表される有機化合物は、下記合成スキーム (c-1) および (c-2) のように合成することもできる。

[0116]

まず、反応式 (c-1) 従ってフルオレニルアミン化合物 (化合物6) とベンゾナフトフラン化合物 (化合物4) と、をカップリングすることにより、ベンゾナフトフラニルアミン化合物 (化合物8) を得ることが出来る。次に、反応式 (c-2) に従って、ベンゾナフトフラニルアミン化合物 (化合物8) とアリール化合物 (化合物5) と、をカップリングすることにより、目的のベンゾナフトフラニルアミン化合物 (G1-1a) を得ることが出来る。以下に、合成スキーム (c-1)、(c-2) を示す。

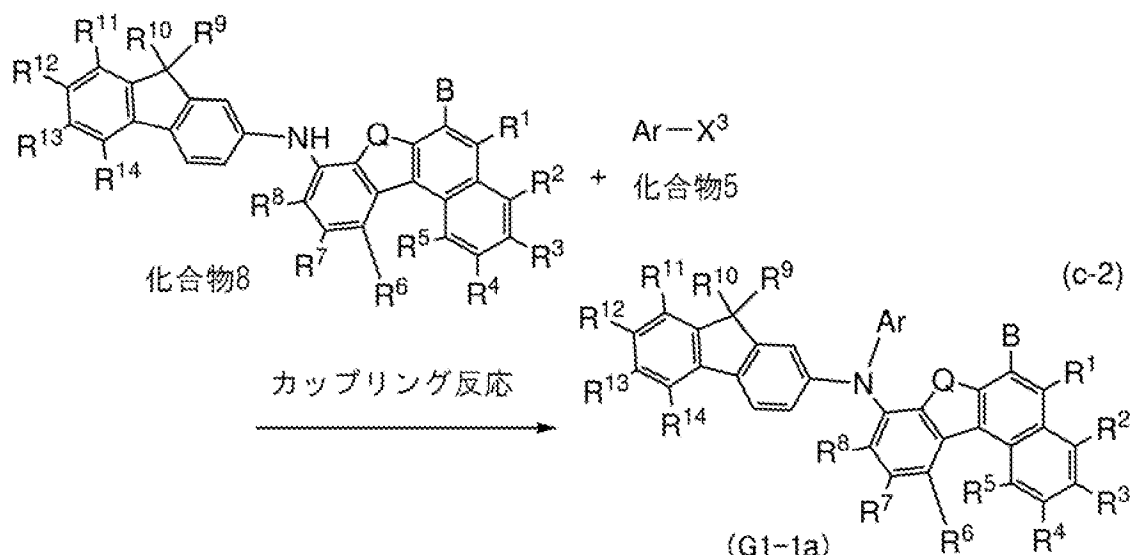
[0117]

[化40]



[0118]

[化41]



[0119]

合成スキーム(c-1)、(c-2)において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、BおよびR¹乃至R⁸およびR¹¹乃至R¹⁴は、水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、R⁹およびR¹⁰はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、Arは置換または無置換の炭素数6乃至13のアリール基を表す。

[0120]

合成スキーム(c-1)および(c-2)において、X²乃至X³はそれぞれ独立に塩素、臭素、ヨウ素、トリフラート基を表す。

[0121]

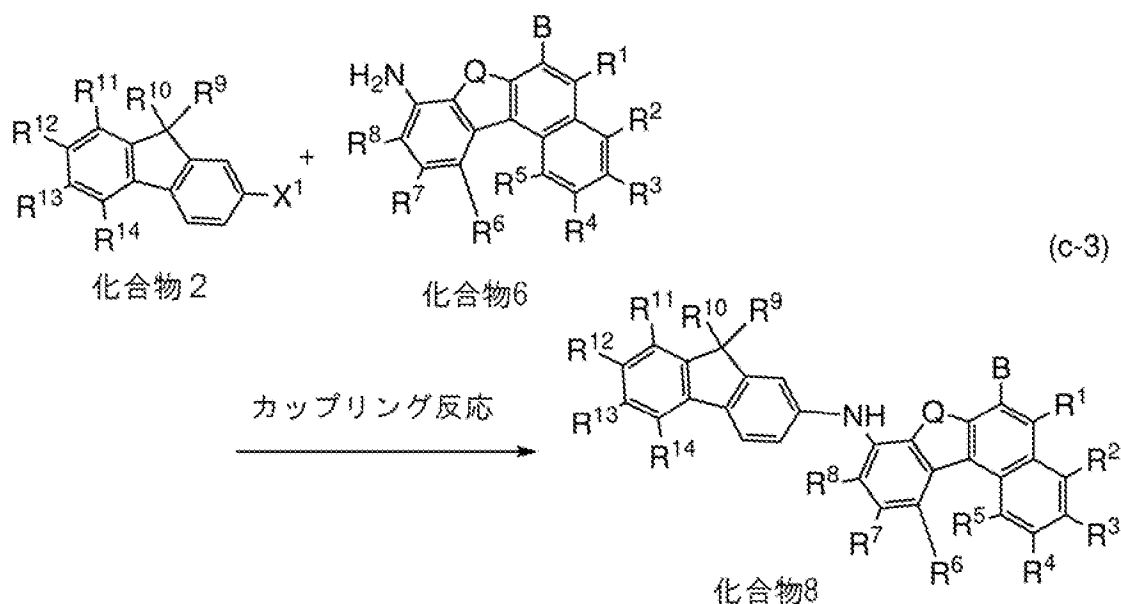
合成スキーム(c-1)および(c-2)において、パラジウム触媒を用いたブッフバルト・ハートウィッグ反応、また、銅又は銅化合物を用いたウルマン反応を行う場合、合成スキーム(a-1)および(a-2)と同じ反応条件を用いることができる。

[0122]

なお、化合物8の合成は下記合成スキーム(c-3)でも行うことができる。

[0123]

[化42]



[0124]

合成スキーム（c-3）において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、BおよびR¹乃至R⁸およびR¹¹乃至R¹⁴は、水素、炭素数1乃至6のアルキル基、炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数6乃至60の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、R⁹およびR¹⁰はそれぞれ独立に水素、炭素数1乃至6のアルキル基炭素数3乃至6の環式炭化水素基、炭素数1乃至6のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数1乃至6のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表す。

[0125]

合成スキーム（c-3）において、X¹はそれぞれ独立に塩素、臭素、ヨウ素、トリフレート基を表す。合成スキーム（c-3）においても合成スキーム（a-1）および（a-2）と同じ反応条件を用いることができる。

[0126]

一般式（G1-1a）で表される有機化合物の合成方法は上記合成スキーム（a-1）および（a-3）および合成スキーム（b-1）および（b-3）および合成スキーム（c-1）および（c-3）に限られるものではない。

[0127]

以上が、一般式（G1）において、Aが一般式（g1）の場合で且つ、（g1）の分子構造がフルオレン-2-アミンである分子構造である、一般式（G1-1a）についての合成方法の説明である。一般式（G1）において、Aが一般式（g1）の場合で且つ、（g1）の分子構造がフルオレン-1-アミン、または（g1）の分子構造がフルオレン-3-アミン、または（g1）の分子構造がフルオレン-4-アミンである化合物の合成についても、合成スキーム（a-1）および（a-3）および合成スキーム（b-1）および（b-3）および合成スキーム（c-1）および（c-3）において、フルオレン化合物の置換基を1位、または、3位、または4位にすることで合成することができる。

[0128]

また、一般式（G1）において、Bが一般式（g1）の場合については、ベンゾナフトフランの6

位に置換基を有する化合物を原料に用いることで本発明のベンゾナフトフラン-6-アミン化合物を得ることができる。

[0129]

(実施の形態2)

本実施の形態では、本発明の一態様の発光デバイスについて説明する。

[0130]

図1Aに、本発明の一態様の発光デバイスを表す図を示す。本発明の一態様の発光デバイスは、第1の電極101と、第2の電極102、EL層103を有している。また、EL層103は、実施の形態1で示した有機化合物を有している。

[0131]

EL層103は発光層113を有しており、発光層113には発光材料が含まれている。発光層113と第1の電極101との間には、正孔注入層111や正孔輸送層112が設けられる。実施の形態1に記載の有機化合物は、高いキャリア輸送性、特に正孔輸送性を有することから、正孔注入層111や正孔輸送層112用いられることが好ましい。

[0132]

また、発光層113において発光材料とともに、実施の形態1に記載の有機化合物と電子輸送材料とが含まれる構成であっても良い。また、この際、実施の形態1に記載の有機化合物と、電子輸送材料とが、励起錯体を形成する構成であっても良い。適切な発光波長を有する励起錯体を形成することによって、発光材料への有効なエネルギー移動を実現し、高い効率、良好な寿命を有する発光デバイスを提供することが可能となる。

[0133]

なお、図1Aには、EL層103に、発光層113、正孔注入層111および正孔輸送層112の他、電子輸送層114、電子注入層115が図示されているが、発光デバイスの構成はこれらに限られることはない。これらいずれかの層を形成しなくても良いし、他の機能を有する層を有していても良い。

[0134]

続いて、上述の発光デバイスの詳細な構造や材料の例について説明する。本発明の一態様の発光デバイスは、上述のように第1の電極101と第2の電極102の一对の電極間に複数の層からなるEL層103を有しており、当該EL層103のいずれかの部分に、実施の形態1で開示した有機化合物が含まれている。

[0135]

第1の電極101は、仕事関数の大きい（具体的には4.0 eV以上）金属、合金、導電性化合物、およびこれらの混合物などを用いて形成することが好ましい。具体的には、例えば、酸化インジウム-酸化スズ（ITO: Indium Tin Oxide）、ケイ素若しくは酸化ケイ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、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（IWZO）等が挙げられる。これらの導電性金属酸化物膜は、通常スパッタリング法により成膜されるが、ゾルーゲル法などを応用して作製しても構わない。作製方法の例としては、酸化インジウム-酸化亜鉛は、酸化インジウムに対し1~20 wt%の酸化亜鉛を加えたターゲットを用いてスパッタリング法により形成する方法などがある。また、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（IWZO）は、酸化インジウムに対し酸化タングステンを0.5~5 wt%、酸化亜鉛を0.1~1 wt%含有したターゲットを用いてスパッタリング法により形成するこ

ともできる。この他、金 (Au)、白金 (Pt)、ニッケル (Ni)、タングステン (W)、クロム (Cr)、モリブデン (Mo)、鉄 (Fe)、コバルト (Co)、銅 (Cu)、パラジウム (Pd)、または金属材料の窒化物 (例えば、窒化チタン) 等が挙げられる。グラフェンも用いることができる。なお、後述する複合材料をEL層103における第1の電極101と接する層に用いることで、仕事関数に関わらず、電極材料を選択することができるようになる。

[0136]

EL層103は積層構造を有していることが好ましいが、当該積層構造については特に限定はなく、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、キャリアブロック層、励起子ブロック層、電荷発生層など、様々な層構造を適用することができる。本実施の形態では、図1Aに示すように、正孔注入層111、正孔輸送層112、発光層113に加えて、電子輸送層114及び電子注入層115を有する構成、及び図1Bに示すように、正孔注入層111、正孔輸送層112、発光層113に加えて、電子輸送層114及び電荷発生層116を有する構成の2種類の構成について説明する。各層を構成する材料について以下に具体的に示す。

[0137]

正孔注入層111は、アクセプタ性を有する物質を含む層である。アクセプタ性を有する物質としては、有機化合物と無機化合物のいずれも用いることが可能である。

[0138]

アクセプタ性を有する物質としては、電子吸引基 (ハロゲン基やシアノ基) を有する化合物を用いることができ、7, 7, 8, 8-テトラシアノー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、2, 3, 6, 7, 10, 11-ヘキサシアノー1, 4, 5, 8, 9, 12-ヘキサアザトリフェニレン (略称: HAT-CN)、1, 3, 4, 5, 7, 8-ヘキサフルオロテトラシアノーナフトキノジメタン (略称: F₆-TCNNQ)、2-(7-ジシアノメチレン-1, 3, 4, 5, 6, 8, 9, 10-オクタフルオロ-7H-ピレン-2-イリデン) マロノニトリル等を挙げることができる。特に、HAT-CNのように複素原子を複数有する縮合芳香環に電子吸引基が結合している化合物が、熱的に安定であり好ましい。また、電子吸引基 (特にフルオロ基のようなハロゲン基やシアノ基) を有する[3]ラジアレン誘導体は、電子受容性が非常に高いため好ましく、具体的には α , α' , α'' -1, 2, 3-シクロプロパントリイリデントリス[4-シアノー2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼンアセトニトリル]、 α , α' , α'' -1, 2, 3-シクロプロパントリイリデントリス[2, 6-ジクロロ-3, 5-ジフルオロ-4-(トリフルオロメチル)ベンゼンアセトニトリル]、 α , α' , α'' -1, 2, 3-シクロプロパントリイリデントリス[2, 3, 4, 5, 6-ペンタフルオロベンゼンアセトニトリル]などが挙げられる。アクセプタ性を有する物質としては以上で述べた有機化合物以外にも、モリブデン酸化物やバナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等を用いることができる。この他、フタロシアニン (略称: H₂Pc) や銅フタロシアニン (CuPc) 等のフタロシアニン系の錯体化合物、4, 4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル (略称: DPAB)、N, N'-ビス{4-[ビス(3-メチルフェニル)アミノ]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: DNTPD) 等の芳香族アミン化合物、或いはポリ(3, 4-エチレンジオキシチオフェン)/ポリ(スチレンスルホン酸) (PEDOT/PSS) 等の高分子等によっても正孔注入層111を形成することができる。アクセプタ性を有する物質は、隣接する正孔輸送層 (あるいは正孔輸送材料) から、電界の印加により電子を引

き抜くことができる。

[0139]

また、正孔注入層111として、正孔輸送性を有する材料に上記アクセプタ性物質を含有させた複合材料を用いることもできる。なお、正孔輸送性を有する材料にアクセプタ性物質を含有させた複合材料を用いることにより、仕事関数に依らず電極を形成する材料を選ぶことができる。つまり、第1の電極101として仕事関数の大きい材料だけでなく、仕事関数の小さい材料も用いることができるようになる。

[0140]

複合材料に用いる正孔輸送性を有する材料としては、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、芳香族炭化水素、高分子化合物（オリゴマー、 dendrimer、ポリマー等）など、種々の有機化合物を用いることができる。なお、複合材料に用いる正孔輸送性を有する材料としては、 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質であることが好ましい。以下では、複合材料における正孔輸送性を有する材料として用いることのできる有機化合物を具体的に列挙する。

[0141]

複合材料に用いることのできる芳香族アミン化合物としては、N, N'-ジ(p-トリル)-N, N'-ジフェニル-p-フェニレンジアミン（略称：DTDPPA）、4, 4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：DPAB）、N, N'-ビス{4-[ビス(3-メチルフェニル)アミノ]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：DNTPD）、1, 3, 5-トリス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ベンゼン（略称：DPA3B）等を挙げることができる。カルバゾール誘導体としては、具体的には、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）、4, 4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル（略称：CBP）、1, 3, 5-トリス[4-(N-カルバゾリル)フェニル]ベンゼン（略称：TCPB）、9-[4-(N-カルバゾリル)]フェニル-10-フェニルアントラセン（略称：CzPA）、1, 4-ビス[4-(N-カルバゾリル)フェニル]-2, 3, 5, 6-テトラフェニルベンゼン等を用いることができる。芳香族炭化水素としては、例えば、2-tert-ブチル-9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン（略称：t-BuDNA）、2-tert-ブチル-9, 10-ジ(1-ナフチル)アントラセン、9, 10-ビス(3, 5-ジフェニルフェニル)アントラセン（略称：DPPA）、2-tert-ブチル-9, 10-ビス(4-フェニルフェニル)アントラセン（略称：t-BuDBA）、9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン（略称：DNA）、9, 10-ジフェニルアントラセン（略称：DPAnth）、2-tert-ブチルアントラセン（略称：t-BuAnth）、9, 10-ビス(4-メチル-1-ナフチル)アントラセン（略称：DMNA）、2-tert-ブチル-9, 10-ビス[2-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン、9, 10-ビス[2-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン、2, 3, 6, 7-テトラメチル-9, 10-ジ(1-ナフチル)アントラセン、2, 3, 6, 7-テトラメチル-9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン、9, 9'-ビアントリル、10, 10'-ジフェニル-9, 9'-ビアントリル、10, 10'-ビス(2-フェニルフェニル)-9, 9'-ビアントリル、10, 10'-

ビス [(2, 3, 4, 5, 6-ペンタフェニル) フェニル] -9, 9'-ビアントリル、アントラセン、テトラセン、ルブレン、ペリレン、2, 5, 8, 11-テトラ (tert-ブチル) ペリレン等が挙げられる。また、この他、ペンタセン、コロネン等も用いることができる。ビニル骨格を有していてもよい。ビニル基を有している芳香族炭化水素としては、例えば、4, 4'-ビス (2, 2-ジフェニルビニル) ビフェニル (略称: DPVBi)、9, 10-ビス [4- (2, 2-ジフェニルビニル) フェニル] アントラセン (略称: DPVPA) 等が挙げられる。

[0142]

また、ポリ (N-ビニルカルバゾール) (略称: PVK) やポリ (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) 等の高分子化合物を用いることもできる。

[0143]

複合材料に用いられる正孔輸送性を有する材料としては、カルバゾール骨格、ジベンゾフラン骨格、ジベンゾチオフェン骨格およびアントラセン骨格のいずれかを有していることがより好ましい。特に、ジベンゾフラン環またはジベンゾチオフェン環を含む置換基を有する芳香族アミン、ナフタレン環を有する芳香族モノアミン、または9-フルオレニル基がアリーレン基を介してアミンの窒素に結合する芳香族モノアミンであっても良い。なお、これら第2の有機化合物が、N, N-ビス (4-ビフェニル) アミノ基を有する物質であると、寿命の良好な発光デバイスを作製することができるため好ましい。以上のような第2の有機化合物としては、具体的には、N- (4-ビフェニル) -6, N-ジフェニルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン (略称: BnfABP)、N, N-ビス (4-ビフェニル) -6-フェニルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン (略称: BBABnf)、4, 4'-ビス (6-フェニルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-イル) -4', 4'-ジフェニルトリフェニルアミン (略称: BnfBB1BP)、N, N-ビス (4-ビフェニル) ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-6-アミン (略称: BBABnf (6))、N, N-ビス (4-ビフェニル) ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン (略称: BBABnf (8))、N, N-ビス (4-ビフェニル) ベンゾ [b] ナフト [2, 3-d] フラン-4-アミン (略称: BBABnf (II) (4))、N, N-ビス [4- (ジベンゾフラン-4-イル) フェニル] -4-アミノ-p-ターフェニル (略称: DBfBB1TP)、N- [4- (ジベンゾチオフェン-4-イル) フェニル] -N-フェニル-4-ビフェニルアミン (略称: ThBA1BP)、4- (2-ナフチル) -4', 4'-ジフェニルトリフェニルアミン (略称: BBAβNB)、4- [4- (2-ナフチル) フェニル] -4', 4'-ジフェニルトリフェニルアミン (略称: BBAβNBi)、4, 4'-ジフェニル-4', 4'- (6; 1'-ビナフチル-2-イル) トリフェニルアミン (略称: BBAαNβNB)、4, 4'-ジフェニル-4', 4'- (7; 1'-ビナフチル-2-イル) トリフェニルアミン (略称: BBAαNβNB-03)、4, 4'-ジフェニル-4', 4'- (7-フェニル) ナフチル-2-イルトリフェニルアミン (略称: BBAPβNB-03)、4, 4'-ジフェニル-4', 4'- (6; 2'-ビナフチル-2-イル) トリフェニルアミン (略称: BBA (βN2) B)、4, 4'-ジフェニル-4', 4'- (7; 2'-ビナフチル-2-イル) トリフェニルアミン (略称: BBA (βN2) B-03)、4, 4'-ジフェニル-4', 4'- (4; 2'-ビナフチル-1-イル) トリフェニルアミン (略称: BBAβNαNB)、4, 4'-ジフェニル-4', 4'-

(5 ; 2' -ビナフチル-1-イル) トリフェニルアミン (略称 : BBAβNαNB-02)、4-(4-ビフェニル)-4'-(2-ナフチル)-4''-フェニルトリフェニルアミン (略称 : TPBiAβNB)、4-(3-ビフェニル)-4'-[4-(2-ナフチル)フェニル]-4''-フェニルトリフェニルアミン (略称 : mTPBiAβNBi)、4-(4-ビフェニル)-4'-[4-(2-ナフチル)フェニル]-4''-フェニルトリフェニルアミン (略称 : TPBiAβNBi)、4-フェニル-4'-(1-ナフチル)トリフェニルアミン (略称 : αNBA1BP)、4,4'-ビス(1-ナフチル)トリフェニルアミン (略称 : αNBB1BP)、4,4'-ジフェニル-4''-[4'-(カルバゾール-9-イル)ビフェニル-4-イル]トリフェニルアミン (略称 : YGTBi1BP)、4'-[4-(3-フェニル-9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]トリリス(1,1'-ビフェニル-4-イル)アミン (略称 : YGTBi1BP-02)、4-ジフェニル-4'-(2-ナフチル)-4''-{9-(4-ビフェニル)カルバゾール}トリフェニルアミン (略称 : YGTBiβNB)、N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-N-[4-(1-ナフチル)フェニル]-9,9'-スピロビ(9H-フルオレン)-2-アミン (略称 : PCBNBSF)、N,N-ビス(4-ビフェニル)-9,9'-スピロビ[9H-フルオレン]-2-アミン (略称 : BBASF)、N,N-ビス(1,1'-ビフェニル-4-イル)-9,9'-スピロビ[9H-フルオレン]-4-アミン (略称 : BBASF(4))、N-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-9,9'-スピロビ(9H-フルオレン)-4-アミン (略称 : oFBiSF)、N-(4-ビフェニル)-N-(ジベンゾフラン-4-イル)-9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミン (略称 : FrBiF)、N-[4-(1-ナフチル)フェニル]-N-[3-(6-フェニルジベンゾフラン-4-イル)フェニル]-1-ナフチルアミン (略称 : mPDBfBNBN)、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン (略称 : BPAFLP)、4-フェニル-3'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン (略称 : mBPAPFLP)、4-フェニル-4'-[4-(9-フェニルフルオレン-9-イル)フェニル]トリフェニルアミン (略称 : BPAFLBi)、4-フェニル-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン (略称 : PCBA1BP)、4,4'-ジフェニル-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン (略称 : PCBBi1BP)、4-(1-ナフチル)-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン (略称 : PCBANB)、4,4'-ジ(1-ナフチル)-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン (略称 : PCBNBB)、N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-アミン (略称 : PCBASF)、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-9,9-ジメチル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9H-フルオレン-2-アミン (略称 : PCBBiF)、N,N-ビス(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-9,9'-スピロビ-9H-フルオレン-4-アミン、N,N-ビス(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-9,9'-スピロビ-9H-フルオレン-3-アミン、N,N-ビス(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-9,9'-スピロビ-9H-フルオレン-2-アミン、N,N-ビス(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-9,9'-スピロビ-9H-フルオレン-1-アミン等を挙げることができる。

[0144]

なお、複合材料に用いられる正孔輸送性を有する材料はそのHOMO準位が -5.7 eV 以上 -5.4 eV 以下の比較的深いHOMO準位を有する物質であることがさらに好ましい。複合材料に用いられる正孔輸送性を有する材料が比較的深いHOMO準位を有することによって、正孔輸送層112への正孔の注入が容易となり、また、寿命の良好な発光デバイスを得ることが容易となる。

[0145]

実施の形態1に記載の有機化合物は、上記複合材料に用いられる正孔輸送性を有する材料として好適に用いることができる。

[0146]

なお、上記複合材料にさらにアルカリ金属又はアルカリ土類金属のフッ化物を混合（好ましくは当該層中のフッ素原子の原子比率が20%以上）することによって、当該層の屈折率を低下させることができる。これによっても、EL層103内部に屈折率の低い層を形成することができ、発光デバイスの外部量子効率を向上させることができる。

[0147]

正孔注入層111を形成することによって、正孔の注入性が良好となり、駆動電圧の小さい発光デバイスを得ることができる。また、アクセプタ性を有する有機化合物は蒸着が容易で成膜がしやすいため、用いやすい材料である。

[0148]

正孔輸送層112は、正孔輸送性を有する材料を含んで形成される。正孔輸送性を有する材料としては、 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有していることが好ましい。上記正孔輸送性を有する材料としては、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（略称：NPB）、N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン（略称：TPD）、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）、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン（略称：BPAPLP）、4-フェニル-3'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン（略称：mBPAPLP）、4-フェニル-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBA1BP）、4,4'-ジフェニル-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBBi1BP）、4-(1-ナフチル)-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBANB）、4,4'-ジ(1-ナフチル)-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBNBB）、9,9-ジメチル-N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]フルオレン-2-アミン（略称：PCBAF）、N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-アミン（略称：PCBASF）などの芳香族アミン骨格を有する化合物や、1,3-ビス(N-カルバゾリル)ベンゼン（略称：mCP）、4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル（略称：CBP）、3,6-ビス(3,5-ジフェニルフェニル)-9-フェニルカルバゾール（略称：CzTP）、3,3'-ビス(9-フェニル-9H-カルバゾール)（略称：PCCP）などのカルバゾール骨格を有する化合物や、4,4',4''-(ベンゼン-1,3,5-トリイル)トリ(ジベンゾチオフェン)（略称：DBT3P-I1）、2,8-ジフェニル-4-[4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]ジベンゾチオフェン（略称：DBTFLP-I11）、4-[4

−(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]−6-フェニルジベンゾチオフェン(略称:DBTFLP-IV)などのチオフェン骨格を有する化合物や、4,4',4''−(ベンゼン-1,3,5-トリイル)トリ(ジベンゾフラン)(略称:DBF3P-II)、4-{3-[3-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]フェニル}ジベンゾフラン(略称:mmDBFFLBi-II)などのフラン骨格を有する化合物が挙げられる。上述した中でも、芳香族アミン骨格を有する化合物やカルバゾール骨格を有する化合物は、信頼性が良好であり、また、正孔輸送性が高く、駆動電圧低減にも寄与するため好ましい。なお、正孔注入層111の複合材料に用いられる正孔輸送性を有する材料として挙げた物質も正孔輸送層112を構成する材料として好適に用いることができる。実施の形態1に記載の有機化合物は、正孔輸送性が高いことから、正孔輸送層112を構成する材料として非常に好適に用いることができる。また、実施の形態1に記載の有機化合物は正孔輸送性が高いことから、正孔輸送層112を100nm以上に厚膜化して形成しても、駆動電圧の上昇が小さく良好な素子特性を有する発光デバイスを提供することができる。正孔輸送層112を厚膜化することで、電極間の光路長を容易に調整することができることから、マイクロキャビティ構造を適切に構成することが容易となる。

[0149]

発光層113は発光物質とホスト材料を有している。なお、発光層113は、その他の材料を同時に含んでいても構わない。また、組成の異なる2層の積層であっても良い。

[0150]

発光物質は蛍光発光物質であっても、りん光発光物質であっても、熱活性化遅延蛍光(TADF)を示す物質であっても、その他の発光物質であっても構わない。

[0151]

発光層113において、蛍光発光物質として用いることが可能な材料としては、例えば、5,6-ビス[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]−2,2'-ビピリジン(略称:PAP2BPY)、5,6-ビス[4'-(10-フェニル-9-アントリル)ビフェニル-4-イル]−2,2'-ビピリジン(略称:PAPP2BPY)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]ピレン-1,6-ジアミン(略称:1,6FLPAPrn)、N,N'-ビス(3-メチルフェニル)−N,N'-ビス[3-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]ピレン-1,6-ジアミン(略称:1,6mMemFLPAPrn)、N,N'-ビス[4-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]−N,N'-ジフェニルスチルベン-4,4'-ジアミン(略称:YGA2S)、4-(9H-カルバゾール-9-イル)−4'-(10-フェニル-9-アントリル)トリフェニルアミン(略称:YGAPA)、4-(9H-カルバゾール-9-イル)−4'-(9,10-ジフェニル-2-アントリル)トリフェニルアミン(略称:2YGAPPA)、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:PCAPA)、ペリレン、2,5,8,11-テトラ(tert-ブチル)ペリレン(略称:TBP)、4-(10-フェニル-9-アントリル)−4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン(略称:PCBAPA)、N,N''-(2-tert-ブチルアントラセン-9,10-ジイルジ-4,1-フェニレン)ビス[N,N',N'-トリフェニル-1,4-フェニレンジアミン](略称:DPABPA)、N,9-ジフェニル-N-[4-(9,10-ジフェニル-2-アントリル)フェニル]−9H-カルバゾール-3-アミン(略称:2PCAPPA)、N-[4-(9,10-ジフェニル

-2-アントリル) フェニル] -N, N', N' -トリフェニル-1, 4-フェニレンジアミン (略称: 2DPAPPA)、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)、クマリン30、N-(9, 10-ジフェニル-2-アントリル) -N, 9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン (略称: 2PCAPA)、N-[9, 10-ビス (1, 1'-ビフェニル-2-イル) -2-アントリル] -N, 9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン (略称: 2PCABPhA)、N-(9, 10-ジフェニル-2-アントリル) -N, N', N' -トリフェニル-1, 4-フェニレンジアミン (略称: 2DPAPA)、N-[9, 10-ビス (1, 1'-ビフェニル-2-イル) -2-アントリル] -N, N', N' -トリフェニル-1, 4-フェニレンジアミン (略称: 2DPABPhA)、9, 10-ビス (1, 1'-ビフェニル-2-イル) -N-[4-(9H-カルバゾール-9-イル) フェニル] -N-フェニルアントラセン-2-アミン (略称: 2YGABPhA)、N, N, 9-トリフェニルアントラセン-9-アミン (略称: DPhAPhA)、クマリン545T、N, N' -ジフェニルキナクリドン、(略称: DPQd)、ルブレン、5, 12-ビス (1, 1'-ビフェニル-4-イル) -6, 11-ジフェニルテトラセン (略称: BPT)、2-(2-{2-[4-(ジメチルアミノ) フェニル] エテニル} -6-メチル-4H-ピラン-4-イリデン) プロパンジニトリル (略称: DCM1)、2-{2-メチル-6-[2-(2, 3, 6, 7-テトラヒドロ-1H, 5H-ベンゾ [i j] キノリジン-9-イル) エテニル] -4H-ピラン-4-イリデン} プロパンジニトリル (略称: DCM2)、N, N, N', N' -テトラキス (4-メチルフェニル) テトラセン-5, 11-ジアミン (略称: p-mPhTD)、7, 14-ジフェニル-N, N, N', N' -テトラキス (4-メチルフェニル) アセナフト [1, 2-a] フルオランテン-3, 10-ジアミン (略称: p-mPhAFD)、2-{2-イソプロピル-6-[2-(1, 1, 7, 7-テトラメチル-2, 3, 6, 7-テトラヒドロ-1H, 5H-ベンゾ [i j] キノリジン-9-イル) エテニル] -4H-ピラン-4-イリデン} プロパンジニトリル (略称: DCJTI)、2-{2-tert-ブチル-6-[2-(1, 1, 7, 7-テトラメチル-2, 3, 6, 7-テトラヒドロ-1H, 5H-ベンゾ [i j] キノリジン-9-イル) エテニル] -4H-ピラン-4-イリデン} プロパンジニトリル (略称: DCJTB)、2-(2, 6-ビス {2-[4-(ジメチルアミノ) フェニル] エテニル} -4H-ピラン-4-イリデン) プロパンジニトリル (略称: BisDCM)、2-{2, 6-ビス [2-(8-メトキシ-1, 1, 7, 7-テトラメチル-2, 3, 6, 7-テトラヒドロ-1H, 5H-ベンゾ [i j] キノリジン-9-イル) エテニル] -4H-ピラン-4-イリデン} プロパンジニトリル (略称: BisDCJTM)、N, N' -(ピレン-1, 6-ジイル) ビス [(6, N-ジフェニルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン) -8-アミン] (略称: 1, 6BnfAPrn-03)、3, 10-ビス [N-(9-フェニル-9H-カルバゾール-2-イル) -N-フェニルアミノ] ナフト [2, 3-b; 6, 7-b'] ビスベンゾフラン (略称: 3, 10PCA2Nbf (IV)-02)、3, 10-ビス [N-(ジベンゾフラン-3-イル) -N-フェニルアミノ] ナフト [2, 3-b; 6, 7-b'] ビスベンゾフラン (略称: 3, 10FrA2Nbf (IV)-02) などが挙げられる。特に、1, 6FLPAPrnや1, 6mMemFLPAPrn、1, 6BnfAPrn-03のようなピレンジアミン化合物に代表される縮合芳香族ジアミン化合物は、ホールトラップ性が高く、発光効率や信頼性に優れているため好ましい。また、これ以外の蛍光発光物質も用いることができる。

[0152]

発光層 113 において、発光物質としてりん光発光物質を用いる場合、用いることが可能な材料としては、例えば、トリス {2-[5-(2-メチルフェニル)-4-(2,6-ジメチルフェニル)-4H-1,2,4-トリアゾール-3-イル- κ N2]} フェニル- κ C} イリジウム (III) (略称:[Ir(mpp tz-dmp)₃])、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(Mp tz)₃])、トリス [4-(3-ビフェニル)-5-イソプロピル-3-フェニル-4H-1,2,4-トリアゾラト] イリジウム (III) (略称:[Ir(iPr p tz-3b)₃]) のような 4H-トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、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(Mp tz 1-mp)₃])、トリス (1-メチル-5-フェニル-3-プロピル-1H-1,2,4-トリアゾラト) イリジウム (III) (略称:[Ir(Pr p tz 1-Me)₃]) のような 1H-トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、f a c-トリス [1-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-2-フェニル-1H-イミダゾール] イリジウム (III) (略称:[Ir(iPr p mi)₃])、トリス [3-(2,6-ジメチルフェニル)-7-メチルイミダゾ [1,2-f] フェナントリジナト] イリジウム (III) (略称:[Ir(dmp imp t-Me)₃]) のようなイミダゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、ビス [2-(4',6'-ジフルオロフェニル) ピリジナト-N, C^{2'}] イリジウム (III) テトラキス (1-ピラゾリル) ボラート (略称: F Ir 6)、ビス [2-(4',6'-ジフルオロフェニル) ピリジナト-N, C^{2'}] イリジウム (III) ピコリナート (略称: F Ir p i c)、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^{2'}} イリジウム (III) ピコリナート (略称:[Ir(CF₃ p p y)₂ (p i c)])、ビス [2-(4',6'-ジフルオロフェニル) ピリジナト-N, C^{2'}] イリジウム (III) アセチルアセトナート (略称: F Ir a c a c) のような電子吸引基を有するフェニルピリジン誘導体を配位子とする有機金属イリジウム錯体などが挙げられる。これらは青色のりん光発光を示す化合物であり、440 nm から 520 nm に発光波長のピークを有する化合物である。

[0153]

また、トリス (4-メチル-6-フェニルピリミジナト) イリジウム (III) (略称:[Ir(mpp pm)₃])、トリス (4-t-ブチル-6-フェニルピリミジナト) イリジウム (III) (略称:[Ir(tBup pm)₃])、(アセチルアセトナト) ビス (6-メチル-4-フェニルピリミジナト) イリジウム (III) (略称:[Ir(mpp pm)₂ (a c a c)]、(アセチルアセトナト) ビス (6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト) イリジウム (III) (略称:[Ir(tBup pm)₂ (a c a c)]、(アセチルアセトナト) ビス [6-(2-ノルボルニル)-4-フェニルピリミジナト] イリジウム (III) (略称:[Ir(nb ppm)₂ (a c a c)]、(アセチルアセトナト) ビス [5-メチル-6-(2-メチルフェニル)-4-フェニルピリミジナト] イリジウム (III) (略称:[Ir(mpp ppm)₂ (a c a c)]、(アセチルアセトナト) ビス (4,6-ジフェニルピリミジナト) イリジウム (III) (略称:[Ir(dpp pm)₂ (a c a c)] のようなピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、(アセチルアセトナト) ビス (3,5-ジメチル-2-フェニルピラジナト) イリジウム (III) (略称:[Ir(mpp r-Me)₂ (a c a c)]、(アセチルアセトナト) ビス (5-イソプロピル-3-メチル-2-フェニルピラジナト) イリジウム (III) (略称:[Ir(mpp r-iPr)₂ (a c a c)] のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス (2-フェニルピリジナト-N, C^{2'}) イリジウム (III) (略称:[I

r (p p y)₃]), ビス (2-フェニルピリジナト-N, C^{2'}) イリジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称: [I r (p p y)₂ (a c a c)]), ビス (ベンゾ [h] キノリナト) イリジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称: [I r (b z q)₂ (a c a c)]), トリス (ベンゾ [h] キノリナト) イリジウム (I I I) (略称: [I r (b z q)₃]), トリス (2-フェニルキノリナト-N, C^{2'}) イリジウム (I I I) (略称: [I r (p q)₃]), ビス (2-フェニルキノリナト-N, C^{2'}) イリジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称: [I r (p q)₂ (a c a c)]), [2-d 3-メチルー (2-ピリジニル-κ N) ベンゾフロ [2, 3-b] ピリジニル-κ C] ビス [2- (5-d 3-メチルー 2-ピリジニル-κ N 2) フェニル-κ C] イリジウム (I I I) (略称: [I r (5 m p p y - d 3)₂ (m b f p y p y - d 3)]), [2-d 3-メチルー (2-ピリジニル-κ N) ベンゾフロ [2, 3-b] ピリジニル-κ C] ビス [2- (2-ピリジニル-κ N) フェニル-κ C] イリジウム (I I I) (略称: [I r (p p y)₂ (m b f p y p y - d 3)]) のようなピリジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体の他、トリス (アセチルアセトナート) (モノフェナントロリン) テルビウム (I I I) (略称: [T b (a c a c)₃ (P h e n)]) のような希土類金属錯体などが挙げられる。これらは主に緑色のりん光発光を示す化合物であり、500 nm から 600 nm に発光波長のピークを有する。なお、ピリジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率にも際だって優れるため、特に好ましい。

[0154]

また、(ジイソブチリルメタナト) ビス [4, 6-ビス (3-メチルフェニル) ピリミジナト] イリジウム (I I I) (略称: [I r (5 m d p p m)₂ (d i b m)]), ビス [4, 6-ビス (3-メチルフェニル) ピリミジナト] (ジピバロイルメタナト) イリジウム (I I I) (略称: [I r (5 m d p p m)₂ (d p m)]), ビス [4, 6-ジ (ナフタレン-1-イル) ピリミジナト] (ジピバロイルメタナト) イリジウム (I I I) (略称: [I r (d 1 n p m)₂ (d p m)]) のようなピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、(アセチルアセトナート) ビス (2, 3, 5-トリフェニルピラジナト) イリジウム (I I I) (略称: [I r (t p p r)₂ (a c a c)]), ビス (2, 3, 5-トリフェニルピラジナト) (ジピバロイルメタナト) イリジウム (I I I) (略称: [I r (t p p r)₂ (d p m)]), (アセチルアセトナート) ビス [2, 3-ビス (4-フルオロフェニル) キノキサリナト] イリジウム (I I I) (略称: [I r (F d p q)₂ (a c a c)]) のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス (1-フェニルイソキノリナト-N, C^{2'}) イリジウム (I I I) (略称: [I r (p i q)₃]), ビス (1-フェニルイソキノリナト-N, C^{2'}) イリジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称: [I r (p i q)₂ (a c a c)]) のようなピリジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体の他、2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18-オクタエチルー 21 H, 23 H-ポルフィリン白金 (I I) (略称: P t O E P) のような白金錯体や、トリス (1, 3-ジフェニル-1, 3-プロパンジオナト) (モノフェナントロリン) ユーロピウム (I I I) (略称: [E u (D B M)₃ (P h e n)]), トリス [1- (2-テノイル) -3, 3, 3-トリフルオロアセトナト] (モノフェナントロリン) ユーロピウム (I I I) (略称: [E u (T T A)₃ (P h e n)]) のような希土類金属錯体などが挙げられる。これらは、赤色のりん光発光を示す化合物であり、600 nm から 700 nm に発光のピークを有する。また、ピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、色度の良い赤色発光が得られる。

[0155]

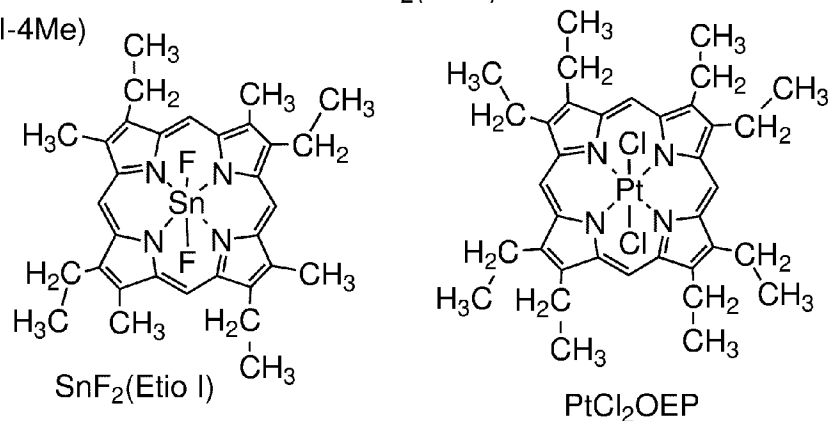
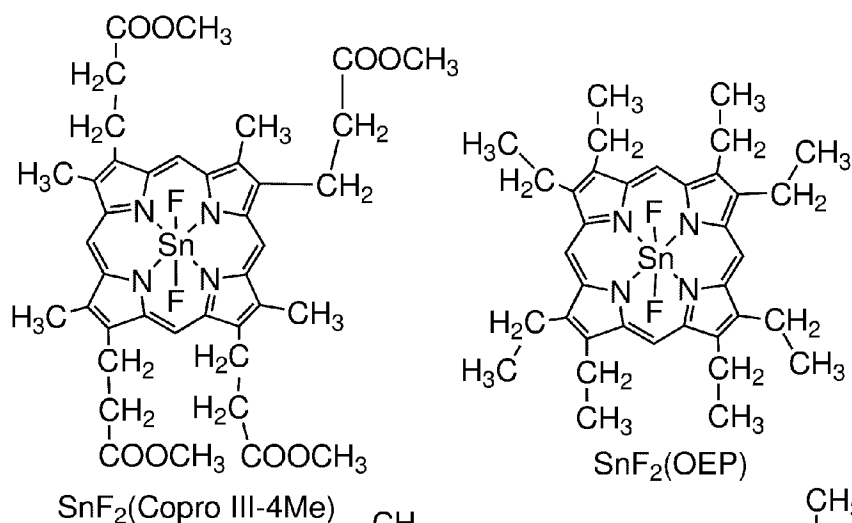
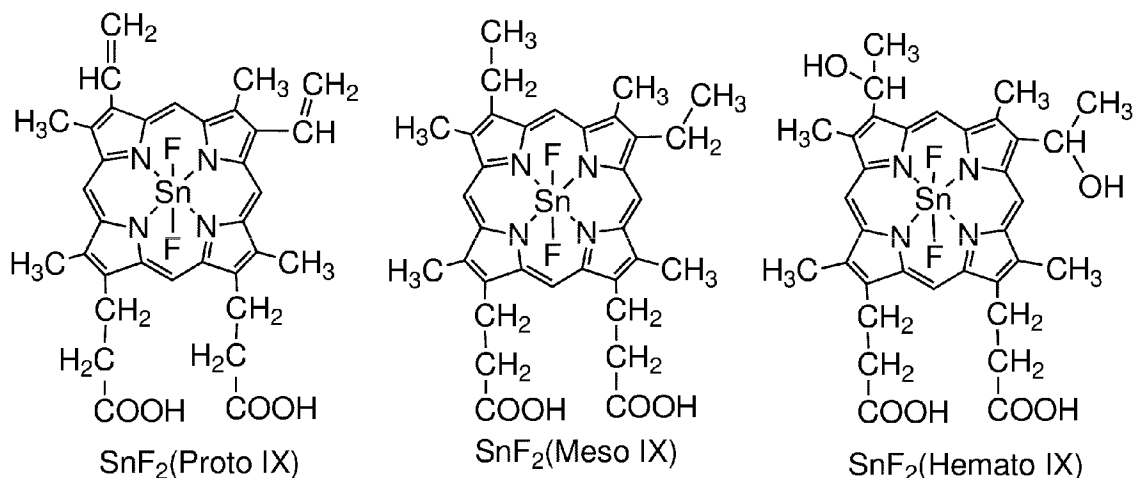
また、以上で述べたりん光性化合物の他、公知のりん光性発光物質を選択し、用いてもよい。

[0156]

TADF材料としてはフラーレン及びその誘導体、アクリジン及びその誘導体、エオシン誘導体等を用いることができる。またマグネシウム (Mg)、亜鉛 (Zn)、カドミウム (Cd)、スズ (Sn)、白金 (Pt)、インジウム (In)、もしくはパラジウム (Pd) 等を含む金属含有ポルフィリンが挙げられる。該金属含有ポルフィリンとしては、例えば、以下の構造式に示されるプロトポルフィリンーフッ化スズ錯体 (SnF_2 (Proto IX))、メソポルフィリンーフッ化スズ錯体 (SnF_2 (Meso IX))、ヘマトポルフィリンーフッ化スズ錯体 (SnF_2 (Hemato IX))、コプロポルフィリンテトラメチルエステルーフッ化スズ錯体 (SnF_2 (Copro III-4Me))、オクタエチルポルフィリンーフッ化スズ錯体 (SnF_2 (OEP))、エチオポルフィリンーフッ化スズ錯体 (SnF_2 (Etio I))、オクタエチルポルフィリンー塩化白金錯体 (PtCl_2OEP) 等も挙げられる。

[0157]

[化43]



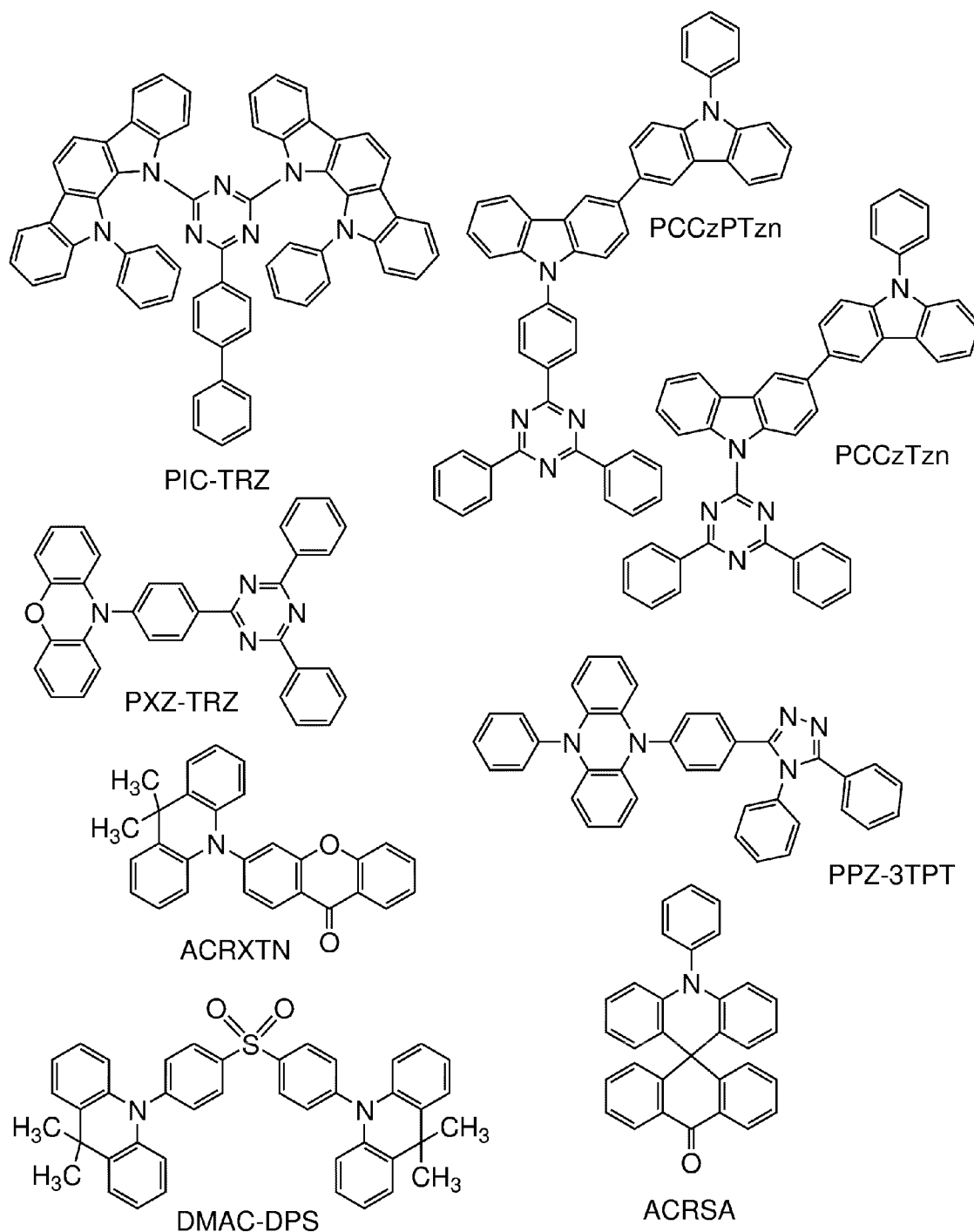
[0 1 5 8]

また、以下の構造式に示される 2- (ビフェニル-4-イル) -4, 6-ビス (12-フェニルイン
ドロ [2, 3-a] カルバゾール-11-イル) -1, 3, 5-トリアジン (略称: PIC-TRZ)
や、9- (4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン-2-イル) -9'-フェニル-9H, 9'
H-3, 3'-ビカルバゾール (略称: PCCzTzn)、2- {4- [3- (N-フェニル-9H
-カルバゾール-3-イル) -9H-カルバゾール-9-イル] フェニル} -4, 6-ジフェニル-
1, 3, 5-トリアジン (略称: PCCzPTzn)、2- [4- (10H-フェノキサジン-10
-イル) フェニル] -4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン (略称: PXZ-TRZ)、3-
[4- (5-フェニル-5, 10-ジヒドロフェナジン-10-イル) フェニル] -4, 5-ジフ
ェニル-1, 2, 4-トリアゾール (略称: PPZ-3TPT)、3- (9, 9-ジメチル-9H-

アクリジン-10-イル)-9H-キサンテン-9-オン (略称: ACRTN)、ビス[4-(9,9-ジメチル-9,10-ジヒドロアクリジン)フェニル]スルホン (略称: DMAC-DPS)、10-フェニル-10H,10'-H-スピロ[アクリジン-9,9'-アントラセン]-10'-オン (略称: ACRSA)、等の π 電子過剰型複素芳香環と π 電子不足型複素芳香環の一方または両方を有する複素環化合物も用いることができる。該複素環化合物は、 π 電子過剰型複素芳香環及び π 電子不足型複素芳香環を有するため、電子輸送性及び正孔輸送性が共に高く、好ましい。中でも、 π 電子不足型複素芳香環を有する骨格のうち、ピリジン骨格、ジアジン骨格 (ピリミジン骨格、ピラジン骨格、ピリダジン骨格)、およびトリアジン骨格は、安定で信頼性が良好なため好ましい。特に、ベンゾフロピリミジン骨格、ベンゾチエノピリミジン骨格、ベンゾフロピラジン骨格、ベンゾチエノピラジン骨格はアクセプター性が高く、信頼性が良好なため好ましい。また、 π 電子過剰型複素芳香環を有する骨格の中でも、アクリジン骨格、フェノキサジン骨格、フェノチアジン骨格、フラン骨格、チオフエン骨格、及びピロール骨格は、安定で信頼性が良好なため、当該骨格の少なくとも一を有することが好ましい。なお、フラン骨格としてはジベンゾフラン骨格が、チオフエン骨格としてはジベンゾチオフエン骨格が、それぞれ好ましい。また、ピロール骨格としては、インドール骨格、カルバゾール骨格、インドロカルバゾール骨格、ビカルバゾール骨格、3-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)-9H-カルバゾール骨格が特に好ましい。なお、 π 電子過剰型複素芳香環と π 電子不足型複素芳香環とが直接結合した物質は、 π 電子過剰型複素芳香環の電子供与性と π 電子不足型複素芳香環の電子受容性が共に強くなり、S1準位とT1準位のエネルギー差が小さくなるため、熱活性化遅延蛍光を効率よく得られることから特に好ましい。なお、 π 電子不足型複素芳香環の代わりに、シアノ基のような電子吸引基が結合した芳香環を用いても良い。また、 π 電子過剰型骨格として、芳香族アミン骨格、フェナジン骨格等を用いることができる。また、 π 電子不足型骨格として、キサンテン骨格、チオキサンテンジオキサイド骨格、オキサジアゾール骨格、トリアゾール骨格、イミダゾール骨格、アントラキノ骨格、フェニルボランやボラントレン等の含ホウ素骨格、ベンゾニトリルまたはシアノベンゼン等のニトリル基またはシアノ基を有する芳香環や複素芳香環、ベンゾフェノン等のカルボニル骨格、ホスフィンオキシド骨格、スルホン骨格等を用いることができる。このように、 π 電子不足型複素芳香環および π 電子過剰型複素芳香環の少なくとも一方の代わりに π 電子不足型骨格および π 電子過剰型骨格を用いることができる。

[0159]

[化44]



[0160]

なお、TADF材料とは、S1準位とT1準位との差が小さく、逆項間交差によって三重項励起エネルギーから一重項励起エネルギーへエネルギーを変換することができる機能を有する材料である。そのため、三重項励起エネルギーをわずかな熱エネルギーによって一重項励起エネルギーにアップコンバート（逆項間交差）が可能で、一重項励起状態を効率よく生成することができる。また、三重項励起エネルギーを発光に変換することができる。

[0161]

また、2種類の物質で励起状態を形成する励起錯体（エキサイプレックス、エキシプレックスまたはExciplexともいう）は、S1準位とT1準位との差が極めて小さく、三重項励起エネルギーを一重項励起エネルギーに変換することが可能なTADF材料としての機能を有する。

[0162]

なお、T1準位の指標としては、低温（例えば77Kから10K）で観測されるりん光スペクトルを用いればよい。TADF材料としては、その蛍光スペクトルの短波長側の裾において接線を引き、その外挿線の波長のエネルギーをS1準位とし、りん光スペクトルの短波長側の裾において接線を引き、その外挿線の波長のエネルギーをT1準位とした際に、そのS1とT1の差が0.3eV以下であることが好ましく、0.2eV以下であることがさらに好ましい。

[0163]

また、TADF材料を発光物質として用いる場合、ホスト材料のS1準位はTADF材料のS1準位より高い方が好ましい。また、ホスト材料のT1準位はTADF材料のT1準位より高いことが好ましい。

[0164]

発光層のホスト材料としては、電子輸送性を有する材料や正孔輸送性を有する材料、上記TADF材料など様々なキャリア輸送材料を用いることができる。

[0165]

正孔輸送性を有する材料としては、アミン骨格や π 電子過剰型複素芳香環骨格を有する有機化合物が好ましい。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）、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'-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）、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン（略称：BPAPLP）、4-フェニル-3'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン（略称：mBPAPLP）、4-フェニル-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBA1BP）、4,4'-ジフェニル-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBBi1BP）、4-(1-ナフチル)-4'-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBANB）、4,4'-ジ(1-ナフチル)-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン（略称：PCBNBB）、9,9-ジメチル-N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]フルオレン-2-アミン（略称：PCBAF）、N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-アミン（略称：PCBASF）などの芳香族アミン骨格を有する化合物や、1,3-ビス(N-カルバゾリル)ベンゼン（略称：mCP）、4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル（略称：CBP）、3,6-ビス(3,5-ジフェニルフェニル)-9-フェニルカルバゾール（略称：CzTP）、3,3'-ビス(9-フェニル-9H-カルバゾール)（略称：PCCP）などのカルバゾール骨格を有する化合物や、4,4',4''-(ベンゼン-1,3,5-トリイル)トリ(ジベンゾチオフェン)（略称：DBT3P-I1）、2,8-ジフェニル-4-[4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]ジベンゾチオフェン（略称：DBTFLP-I1I）、4-[4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]-6-フェニルジベンゾチオフェン（略称：DBTFLP-IV）などのチオフェン骨格を有する化合物や、4,4',4''-(ベンゼン-1,3,5-トリイル)トリ(ジベンゾフラン)（略称：DBF3P-I1）、4-{3-[3-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)フェニル]フェニル}ジベンゾフラン（略称：mmDB

FFLBi-I I)などのフラン骨格を有する化合物が挙げられる。上述した中でも、芳香族アミン骨格を有する化合物やカルバゾール骨格を有する化合物は、信頼性が良好であり、また、正孔輸送性が高く、駆動電圧低減にも寄与するため好ましい。また、実施の形態1で説明した有機化合物も用いることができる。

[0166]

電子輸送性を有する材料としては、例えば、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト)ベリリウム(I I)(略称: BeBq₂)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(4-フェニルフェノラト)アルミニウム(I I I)(略称: BA1q)、ビス(8-キノリノラト)亜鉛(I I)(略称: Znq)、ビス[2-(2-ベンゾオキサゾリル)フェノラト]亜鉛(I I)(略称: ZnPBO)、ビス[2-(2-ベンゾチアゾリル)フェノラト]亜鉛(I I)(略称: ZnBTZ)などの金属錯体や、 π 電子不足型複素芳香環骨格を有する有機化合物が好ましい。 π 電子不足型複素芳香環骨格を有する有機化合物としては、例えば、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)、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)、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)、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)、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)、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-I I)などのポリアゾール骨格を有する複素環化合物や、2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 2mDBTPDBq-I I)、2-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル-3-イル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 2mDBTBPDq-I I)、2-[3'-(9H-カルバゾール-9-イル)ビフェニル-3-イル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 2mCzBPDBq)、4,6-ビス[3-(フェナントレン-9-イル)フェニル]ピリミジン(略称: 4,6mPnP2Pm)、4,6-ビス[3-(4-ジベンゾチエニル)フェニル]ピリミジン(略称: 4,6mDBTP2Pm-I I)、4,8-ビス[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ベンゾ[h]キナゾリン(略称: 4,8mDBtP2Bqn)などのジアジン骨格を有する複素環化合物や、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: 35DCzPPy)、1,3,5-トリ[3-(3-ピリジル)フェニル]ベンゼン(略称: TmPyPB)などのピリジン骨格を有する複素環化合物が挙げられる。上述した中でも、ジアジン骨格を有する複素環化合物やピリジン骨格を有する複素環化合物は、信頼性が良好であり好ましい。特に、ジアジン(ピリミジンやピラジン)骨格を有する複素環化合物は、電子輸送性が高く、駆動電圧低減にも寄与する。

[0167]

ホスト材料として用いることが可能なTADF材料としては、先にTADF材料として挙げたものを同様に用いることができる。TADF材料をホスト材料として用いると、TADF材料で生成した三重項励起エネルギーが、逆項間交差によって一重項励起エネルギーに変換され、さらに発光物質へエネルギー移動することで、発光デバイスの発光効率を高めることができる。このとき、TADF材料がエネルギードナーとして機能し、発光物質がエネルギーアクセプターとして機能する。

[0168]

これは、上記発光物質が蛍光発光物質である場合に、非常に有効である。また、このとき、高い発光効率を得るためには、TADF材料のS1準位は、蛍光発光物質のS1準位より高いことが好ましい。また、TADF材料のT1準位は、蛍光発光物質のS1準位より高いことが好ましい。したがって、TADF材料のT1準位は、蛍光発光物質のT1準位より高いことが好ましい。

[0169]

また、蛍光発光物質の最も低エネルギー側の吸収帯の波長と重なるような発光を呈するTADF材料を用いることが好ましい。そうすることで、TADF材料から蛍光発光物質への励起エネルギーの移動がスムーズとなり、効率よく発光が得られるため、好ましい。

[0170]

また、効率よく三重項励起エネルギーから逆項間交差によって一重項励起エネルギーが生成されるためには、TADF材料でキャリア再結合が生じることが好ましい。また、TADF材料で生成した三重項励起エネルギーが蛍光発光物質の三重項励起エネルギーに移動しないことが好ましい。そのためには、蛍光発光物質は、蛍光発光物質が有する発光団（発光の原因となる骨格）の周囲に保護基を有すると好ましい。該保護基としては、 π 結合を有さない置換基が好ましく、飽和炭化水素が好ましく、具体的には炭素数3以上10以下のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3以上10以下のシクロアルキル基、炭素数3以上10以下のトリアルキルシリル基が挙げられ、保護基が複数あるとさらに好ましい。 π 結合を有さない置換基は、キャリアを輸送する機能に乏しいため、キャリア輸送やキャリア再結合に影響をほとんど与えずに、TADF材料と蛍光発光物質の発光団との距離を遠ざけることができる。ここで、発光団とは、蛍光発光物質において発光の原因となる原子団（骨格）を指す。発光団は、 π 結合を有する骨格が好ましく、芳香環を含むことが好ましく、縮合芳香環または縮合複素芳香環を有すると好ましい。縮合芳香環または縮合複素芳香環としては、フェナントレン骨格、スチルベン骨格、アクリドン骨格、フェノキサジン骨格、フェノチアジン骨格等が挙げられる。特にナフタレン骨格、アントラセン骨格、フルオレン骨格、クリセン骨格、トリフェニレン骨格、テトラセン骨格、ピレン骨格、ペリレン骨格、クマリン骨格、キナクリドン骨格、ナフトビスベンゾフラン骨格を有する蛍光発光物質は蛍光量子収率が高いため好ましい。

[0171]

蛍光発光物質を発光物質として用いる場合、ホスト材料としては、アントラセン骨格を有する材料が好適である。アントラセン骨格を有する物質を蛍光発光物質のホスト材料として用いると、発光効率、耐久性共に良好な発光層を実現することが可能である。ホスト材料として用いるアントラセン骨格を有する物質としては、ジフェニルアントラセン骨格、特に9,10-ジフェニルアントラセン骨格を有する物質が化学的に安定であるため好ましい。また、ホスト材料がカルバゾール骨格を有する場合、正孔の注入・輸送性が高まるため好ましいが、カルバゾールにベンゼン環がさらに縮合したベンゾカルバゾール骨格を含む場合、カルバゾールよりもHOMOが0.1 eV程度浅くなり、正孔が入りやすくなるためより好ましい。特に、ホスト材料がジベンゾカルバゾール骨格を含む場合、カルバゾールよりもHOMOが0.1 eV程度浅くなり、正孔が入りやすくなる上に、正孔輸送性にも優れ、耐熱性も高くなるため好適である。したがって、さらにホスト材料として好ましいのは、9,10-ジフェニルアントラセン骨格およびカルバゾール骨格（あるいはベンゾカルバゾール骨格やジベンゾカルバゾール骨格）を同時に有する物質である。なお、上記の正孔注入・輸送性の観点から、カルバゾール骨格に換えて、ベンゾフルオレン骨格やジベンゾフルオレン骨格を用いてもよい。このような物質の例としては、9-フェニル-3-[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：PCzPA）、3-[4-(1-ナフチル)-フェニル]-9-フェニル-9H-カルバゾール（略称：PCPN）、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）、7-[4-(10-フェニル-9-アントリル)-フェニル]-7H-ジベンゾ[c, g]カルバゾール（略称：cgDBCzPA）、6-[3-(9, 10-ジフェニル-2-アントリル)-フェニル]-ベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン（略称：2mBnfPPA）、9-フェニル-10-{4-(9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル)ビフェニル-4'-イル}アントラセン（略称：FLPPA）、9-(1-ナフチル)-10-[4-(2-ナフチル)-フェニル]アントラセン（略称： α N- β NPA nth）等が挙げられる。特に、CzPA、cgDBCzPA 2mBnfPPA、PCzPAは非常に良好な特性を示すため、好ましい選択である。

[0172]

なお、ホスト材料は複数種の物質を混合した材料であっても良く、混合したホスト材料を用いる場合は、電子輸送性を有する材料と、正孔輸送性を有する材料とを混合することが好ましい。電子輸送性を有する材料と、正孔輸送性を有する材料を混合することによって、発光層113の輸送性を容易に調整することができ、再結合領域の制御も簡便に行うことができる。正孔輸送性を有する材料と電子輸送性を有する材料の含有量の重量比は、正孔輸送性を有する材料：電子輸送性を有する材料＝1：19～19：1とすればよい。なお、混合したホスト材料における電子輸送性を有する材料として、実施の形態1に記載の有機化合物を好適に用いることができる。

[0173]

なお、上記混合された材料の一部として、りん光発光物質を用いることができる。りん光発光物質は、発光物質として蛍光発光物質を用いる際に蛍光発光物質へ励起エネルギーを供与するエネルギードナーとして用いることができる。

[0174]

また、これら混合された材料同士で励起錯体を形成しても良い。当該励起錯体は発光物質の最も低エネルギー側の吸収帯の波長と重なるような発光を呈する励起錯体を形成するような組み合わせを選択することで、エネルギー移動がスムーズとなり、効率よく発光が得られるため好ましい。また、当該構成を用いることで駆動電圧も低下するため好ましい。

[0175]

なお、励起錯体を形成する材料の少なくとも一方は、りん光発光物質であってもよい。そうすることで、三重項励起エネルギーを逆項間交差によって効率よく一重項励起エネルギーへ変換することができる。

[0176]

効率よく励起錯体を形成する材料の組み合わせとしては、正孔輸送性を有する材料のHOMO準位が電子輸送性を有する材料のHOMO準位以上であると好ましい。また、正孔輸送性を有する材料のLUMO準位が電子輸送性を有する材料のLUMO準位以上であると好ましい。なお、材料のLUMO準位およびHOMO準位は、サイクリックボルタンメトリ（CV）測定によって測定される材料の電気化学特性（還元電位および酸化電位）から導出することができる。

[0177]

なお、励起錯体の形成は、例えば正孔輸送性を有する材料の発光スペクトル、電子輸送性を有する材料の発光スペクトル、およびこれら材料を混合した混合膜の発光スペクトルを比較し、混合膜の発光

スペクトルが、各材料の発光スペクトルよりも長波長シフトする（あるいは長波長側に新たなピークを持つ）現象を観測することにより確認することができる。あるいは、正孔輸送性を有する材料の過渡フォトルミネッセンス（PL）、電子輸送性を有する材料の過渡PL、及びこれら材料を混合した混合膜の過渡PLを比較し、混合膜の過渡PL寿命が、各材料の過渡PL寿命よりも長寿命成分を有する、あるいは遅延成分の割合が大きくなるなどの過渡応答の違いを観測することにより、確認することができる。また、上述の過渡PLは過渡エレクトロルミネッセンス（EL）と読み替えても構わない。すなわち、正孔輸送性を有する材料の過渡EL、電子輸送性を有する材料の過渡EL及びこれらの混合膜の過渡ELを比較し、過渡応答の違いを観測することによっても、励起錯体の形成を確認することができる。

[0178]

電子輸送層114は、電子輸送性を有する物質を含む層である。電子輸送性を有する物質としては、上記ホスト材料に用いることが可能な電子輸送性を有する物質として挙げたものを用いることができる。

[0179]

なお、電子輸送層114は電界強度 $[V/cm]$ の平方根が600における電子移動度が $1 \times 10^{-7} cm^2/Vs$ 以上 $5 \times 10^{-5} cm^2/Vs$ 以下であることが好ましい。電子輸送層114における電子の輸送性を落とすことにより発光層への電子の注入量を制御することができ、発光層が電子過多の状態になることを防ぐことができる。また、電子輸送層は電子輸送性を有する材料と、アルカリ金属またはアルカリ金属の単体、化合物もしくは錯体を含むことが好ましい。これらの構成は、特に正孔注入層を複合材料として形成し、当該複合材料における正孔輸送性を有する材料のHOMO準位が $-5.7 eV$ 以上 $-5.4 eV$ 以下の比較的深いHOMO準位を有する物質である場合に、寿命が良好となるため特に好ましい。なお、この際、電子輸送性を有する材料は、そのHOMO準位が $-6.0 eV$ 以上であることが好ましい。また、当該電子輸送性を有する材料はアントラセン骨格を有する有機化合物であることが好ましく、アントラセン骨格と複素環骨格の両方を含む有機化合物であることがより好ましい。当該複素環骨格としては、含窒素5員環骨格または含窒素6員環骨格が好ましく、これら複素環骨格としては、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環などのように2つの複素原子を環に含む含窒素5員環骨格または含窒素6員環骨格を有することが特に好ましい。また、アルカリ金属またはアルカリ金属の単体、化合物もしくは錯体としては、8-ヒドロキシキノリナト構造を含むことが好ましい。具体的には、例えば8-ヒドロキシキノリナト-リチウム（略称：Li q）、8-ヒドロキシキノリナト-ナトリウム（略称：Na q）などを挙げることができる。特に、一価の金属イオンの錯体、中でもリチウムの錯体が好ましく、Li qがより好ましい。なお、8-ヒドロキシキノリナト構造を含む場合、そのメチル置換体（例えば2-メチル置換体や5-メチル置換体）などを用いることもできる。また、電子輸送層中においてアルカリ金属またはアルカリ金属の単体、化合物もしくは錯体は、その厚さ方向において濃度差（0である場合も含む）が存在することが好ましい。

[0180]

電子輸送層114と第2の電極102との間に、電子注入層115として、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_2)、8-ヒドロキシキノリナト-リチウム（略称：Li q）等のようなアルカリ金属又はアルカリ土類金属又はそれらの化合物を含む層を設けても良い。電子注入層115は、電子輸送性を有する物質からなる層中にアルカリ金属又はアルカリ土類

金属又はそれらの化合物を含有させたものや、エレクトライドを用いてもよい。エレクトライドとしては、例えば、カルシウムとアルミニウムの混合酸化物に電子を高濃度添加した物質等が挙げられる。

[0181]

なお、電子注入層115として、電子輸送性を有する物質（好ましくはビピリジン骨格を有する有機化合物）に上記アルカリ金属又はアルカリ土類金属のフッ化物を微結晶状態となる濃度以上（50wt%以上）含ませた層を用いることも可能である。当該層は、屈折率の低い層であることから、より外部量子効率の良好な発光デバイスを提供することが可能となる。

[0182]

また、電子注入層115の代わりに電荷発生層116を設けても良い（図1B）。電荷発生層116は、電位をかけることによって当該層の陰極側に接する層に正孔を、陽極側に接する層に電子を注入することができる層のことである。電荷発生層116には、少なくともP型層117が含まれる。P型層117は、上述の正孔注入層111を構成することができる材料として挙げた複合材料を用いて形成することが好ましい。またP型層117は、複合材料を構成する材料として上述したアクセプタ材料を含む膜と正孔輸送材料を含む膜とを積層して構成しても良い。P型層117に電位をかけることによって、電子輸送層114に電子が、陰極である第2の電極102に正孔が注入され、発光デバイスが動作する。また、本発明の一態様の有機化合物は屈折率が低い有機化合物であることから、P型層117に用いることによって、外部量子効率の良好な発光デバイスを得ることができる。

[0183]

なお、電荷発生層116はP型層117の他に電子リレー層118及び電子注入バッファ層119のいずれか一又は両方がもうけられていることが好ましい。

[0184]

電子リレー層118は少なくとも電子輸送性を有する物質を含み、電子注入バッファ層119とP型層117との相互作用を防いで電子をスムーズに受け渡す機能を有する。電子リレー層118に含まれる電子輸送性を有する物質のLUMO準位は、P型層117におけるアクセプタ性物質のLUMO準位と、電子輸送層114における電荷発生層116に接する層に含まれる物質のLUMO準位との間であることが好ましい。電子リレー層118に用いられる電子輸送性を有する物質におけるLUMO準位の具体的なエネルギー準位は−5.0eV以上、好ましくは−5.0eV以上−3.0eV以下とするとよい。なお、電子リレー層118に用いられる電子輸送性を有する物質としてはフタロシアニン系の材料又は金属−酸素結合と芳香族配位子を有する金属錯体を用いることが好ましい。

[0185]

電子注入バッファ層119には、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、およびこれらの化合物（アルカリ金属化合物（酸化リチウム等の酸化物、ハロゲン化物、炭酸リチウムや炭酸セシウム等の炭酸塩を含む）、アルカリ土類金属化合物（酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む）、または希土類金属の化合物（酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む））等の電子注入性の高い物質を用いることが可能である。

[0186]

また、電子注入バッファ層119が、電子輸送性を有する物質とドナー性物質を含んで形成される場合には、ドナー性物質として、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、およびこれらの化合物（アルカリ金属化合物（酸化リチウム等の酸化物、ハロゲン化物、炭酸リチウムや炭酸セシウム等

の炭酸塩を含む)、アルカリ土類金属化合物(酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む)、または希土類金属の化合物(酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む))の他、テトラチアナフタセン(略称:TTN)、ニッケロセン、デカメチルニッケロセン等の有機化合物を用いることもできる。なお、電子輸送性を有する物質としては、先に説明した電子輸送層114を構成する材料と同様の材料を用いて形成することができる。

[0187]

第2の電極102を形成する物質としては、仕事関数の小さい(具体的には3.8eV以下)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。このような陰極材料の具体例としては、リチウム(Li)やセシウム(Cs)等のアルカリ金属、およびマグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)、ストロンチウム(Sr)等の元素周期表の第1族または第2族に属する元素、およびこれらを含む合金(MgAg、AlLi)、ユウロピウム(Eu)、イッテルビウム(Yb)等の希土類金属およびこれらを含む合金等が挙げられる。しかしながら、第2の電極102と電子輸送層との間に、電子注入層を設けることにより、仕事関数の大小に関わらず、Al、Ag、ITO、ケイ素若しくは酸化ケイ素を含有した酸化インジウム-酸化スズ等様々な導電性材料を第2の電極102として用いることができる。

これら導電性材料は、真空蒸着法やスパッタリング法などの乾式法、インクジェット法、スピンコート法等を用いて成膜することが可能である。また、ゾルーゲル法を用いて湿式法で形成しても良いし、金属材料のペーストを用いて湿式法で形成してもよい。

[0188]

また、EL層103の形成方法としては、乾式法、湿式法を問わず、種々の方法を用いることができる。例えば、真空蒸着法、グラビア印刷法、オフセット印刷法、スクリーン印刷法、インクジェット法またはスピンコート法など用いても構わない。

[0189]

また上述した各電極または各層を異なる成膜方法を用いて形成しても構わない。

[0190]

なお、第1の電極101と第2の電極102との間に設けられる層の構成は、上記のものには限定されない。しかし、発光領域と電極やキャリア注入層に用いられる金属とが近接することによって生じる消光が抑制されるように、第1の電極101および第2の電極102から離れた部位に正孔と電子とが再結合する発光領域を設けた構成が好ましい。

[0191]

また、発光層113に接する正孔輸送層や電子輸送層、特に発光層113における再結合領域に近いキャリア輸送層は、発光層で生成した励起子からのエネルギー移動を抑制するため、そのバンドギャップが発光層を構成する発光材料もしくは、発光層に含まれる発光材料が有するバンドギャップより大きいバンドギャップを有する物質で構成することが好ましい。

[0192]

続いて、複数の発光ユニットを積層した構成の発光デバイス(積層型素子、タンデム型素子ともいう)の態様について、図1Cを参照して説明する。この発光デバイスは、陽極と陰極との間に、複数の発光ユニットを有する発光デバイスである。一つの発光ユニットは、図1Aで示したEL層103とほぼ同様な構成を有する。つまり、図1Cで示す発光デバイスは複数の発光ユニットを有する発光デバイスであり、図1A又は図1Bで示した発光デバイスは、1つの発光ユニットを有する発光デバイス

であるということができる。

[0193]

図1Cにおいて、陽極501と陰極502との間には、第1の発光ユニット511と第2の発光ユニット512が積層されており、第1の発光ユニット511と第2の発光ユニット512との間には電荷発生層513が設けられている。陽極501と陰極502はそれぞれ図1Aにおける第1の電極101と第2の電極102に相当し、図1Aの説明で述べたものと同じものを適用することができる。また、第1の発光ユニット511と第2の発光ユニット512は同じ構成であっても異なる構成であってもよい。

[0194]

電荷発生層513は、陽極501と陰極502に電圧を印加したときに、一方の発光ユニットに電子を注入し、他方の発光ユニットに正孔を注入する機能を有する。すなわち、図1Cにおいて、陽極の電位の方が陰極の電位よりも高くなるように電圧を印加した場合、電荷発生層513は、第1の発光ユニット511に電子を注入し、第2の発光ユニット512に正孔を注入するものであればよい。

[0195]

電荷発生層513は、図1Bにて説明した電荷発生層116と同様の構成で形成することが好ましい。有機化合物と金属酸化物の複合材料は、キャリア注入性、キャリア輸送性に優れているため、低電圧駆動、低電流駆動を実現することができる。なお、発光ユニットの陽極側の面が電荷発生層513に接している場合は、電荷発生層513が発光ユニットの正孔注入層の役割も担うことができるため、発光ユニットは正孔注入層を設けなくとも良い。

[0196]

また、電荷発生層513に電子注入バッファ層119を設ける場合、当該電子注入バッファ層119が陽極側の発光ユニットにおける電子注入層の役割を担うため、陽極側の発光ユニットには必ずしも電子注入層を形成する必要はない。

[0197]

図1Cでは、2つの発光ユニットを有する発光デバイスについて説明したが、3つ以上の発光ユニットを積層した発光デバイスについても、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デバイスのように、一対の電極間に複数の発光ユニットを電荷発生層513で仕切って配置することで、電流密度を低く保ったまま、高輝度発光を可能とし、さらに長寿命な素子を実現できる。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。

[0198]

また、それぞれの発光ユニットの発光色を異なるものにすることで、発光デバイス全体として、所望の色の発光を得ることができる。例えば、2つの発光ユニットを有する発光デバイスにおいて、第1の発光ユニットで赤と緑の発光色、第2の発光ユニットで青の発光色を得ることで、発光デバイス全体として白色発光する発光デバイスを得ることも可能である。

[0199]

また、上述のEL層103や第1の発光ユニット511、第2の発光ユニット512及び電荷発生層などの各層や電極は、例えば、蒸着法（真空蒸着法を含む）、液滴吐出法（インクジェット法ともいう）、塗布法、グラビア印刷法等の方法を用いて形成することができる。また、それらは低分子材料、中分子材料（オリゴマー、 dendrimerを含む）、または高分子材料を含んでも良い。

[0200]

(実施の形態 3)

本実施の形態では、実施の形態 2 に記載の発光デバイスを用いた発光装置について説明する。

[0201]

本実施の形態では、実施の形態 2 に記載の発光デバイスを用いて作製された発光装置について図 2 を用いて説明する。なお、図 2 A は、発光装置を示す上面図、図 2 B は図 2 A を A-B および C-D で切断した断面図である。この発光装置は、発光デバイスの発光を制御するものとして、点線で示された駆動回路部（ソース線駆動回路）601、画素部 602、駆動回路部（ゲート線駆動回路）603 を含んでいる。また、604 は封止基板、605 はシール材であり、シール材 605 で囲まれた内側は、空間 607 になっている。

[0202]

なお、引き回し配線 608 はソース線駆動回路 601 及びゲート線駆動回路 603 に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となる FPC（フレキシブルプリントサーキット）609 からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここでは FPC しか図示されていないが、この FPC にはプリント配線基板（PWB）が取り付けられていても良い。本明細書における発光装置には、発光装置本体だけでなく、それに FPC もしくは PWB が取り付けられた状態をも含むものとする。

[0203]

次に、断面構造について図 2 B を用いて説明する。素子基板 610 上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、ここでは、駆動回路部であるソース線駆動回路 601 と、画素部 602 中の一つの画素が示されている。

[0204]

素子基板 610 はガラス、石英、有機樹脂、金属、合金、半導体などからなる基板の他、FRP（Fiber Reinforced Plastics）、PVF（ポリビニルフロライド）、ポリエステルまたはアクリル樹脂等からなるプラスチック基板を用いて作製すればよい。

[0205]

画素や駆動回路に用いられるトランジスタの構造は特に限定されない。例えば、逆スタガ型のトランジスタとしてもよいし、スタガ型のトランジスタとしてもよい。また、トップゲート型のトランジスタでもボトムゲート型トランジスタでもよい。トランジスタに用いる半導体材料は特に限定されず、例えば、シリコン、ゲルマニウム、炭化シリコン、窒化ガリウム等を用いることができる。または、In-Ga-Zn 系金属酸化物などの、インジウム、ガリウム、亜鉛のうち少なくとも一つを含む酸化物半導体を用いてもよい。

[0206]

トランジスタに用いる半導体材料の結晶性についても特に限定されず、非晶質半導体、結晶性を有する半導体（微結晶半導体、多結晶半導体、単結晶半導体、又は一部に結晶領域を有する半導体）のいずれを用いてもよい。結晶性を有する半導体を用いると、トランジスタ特性の劣化を抑制できるため好ましい。

[0207]

ここで、上記画素や駆動回路に設けられるトランジスタの他、後述するタッチセンサ等に用いられるトランジスタなどの半導体装置には、酸化物半導体を適用することが好ましい。特にシリコンよりもバンドギャップの広い酸化物半導体を適用することが好ましい。シリコンよりもバンドギャップの

広い酸化物半導体を用いることで、トランジスタのオフ状態における電流を低減できる。

[0208]

上記酸化物半導体は、少なくともインジウム(In)又は亜鉛(Zn)を含むことが好ましい。また、In-M-Zn系酸化物(MはAl、Ti、Ga、Ge、Y、Zr、Sn、La、CeまたはHf等の金属)で表記される酸化物を含む酸化物半導体であることがより好ましい。

[0209]

特に、半導体層として、複数の結晶部を有し、当該結晶部はc軸が半導体層の被形成面、または半導体層の上面に対し垂直に配向し、且つ隣接する結晶部間には粒界を有さない酸化物半導体膜を用いることが好ましい。

[0210]

半導体層としてこのような材料を用いることで、電気特性の変動が抑制され、信頼性の高いトランジスタを実現できる。

[0211]

また、上述の半導体層を有するトランジスタはその低いオフ電流により、トランジスタを介して容量に蓄積した電荷を長期間に亘って保持することが可能である。このようなトランジスタを画素に適用することで、各表示領域に表示した画像の階調を維持しつつ、駆動回路を停止することも可能となる。その結果、極めて消費電力の低減された電子機器を実現できる。

[0212]

トランジスタの特性安定化等のため、下地膜を設けることが好ましい。下地膜としては、酸化シリコン膜、窒化シリコン膜、酸化窒化シリコン膜、窒化酸化シリコン膜などの無機絶縁膜を用い、単層で又は積層して作製することができる。下地膜はスパッタリング法、CVD (Chemical Vapor Deposition) 法 (プラズマCVD法、熱CVD法、MOCVD (Metal Organic CVD) 法など)、ALD (Atomic Layer Deposition) 法、塗布法、印刷法等を用いて形成できる。なお、下地膜は、必要で無ければ設けなくてもよい。

[0213]

なお、FET623は駆動回路部601に形成されるトランジスタの一つを示すものである。また、駆動回路は、種々のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成すれば良い。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー体型を示すが、必ずしもその必要はなく、駆動回路を基板上ではなく外部に形成することもできる。

[0214]

また、画素部602はスイッチング用FET611と、電流制御用FET612とそのドレインに電氣的に接続された第1の電極613とを含む複数の画素により形成されているが、これに限定されず、3つ以上のFETと、容量素子とを組み合わせた画素部としてもよい。

[0215]

なお、第1の電極613の端部を覆って絶縁物614が形成されている。ここでは、ポジ型の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成することができる。

[0216]

また、後に形成するEL層等の被覆性を良好なものとするため、絶縁物614の上端部または下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにする。例えば、絶縁物614の材料としてポジ型の感光性アクリル樹脂を用いた場合、絶縁物614の上端部のみに曲率半径(0.2 μm~3 μm)を有する曲

面を持たせることが好ましい。また、絶縁物 614 として、ネガ型の感光性樹脂、或いはポジ型の感光性樹脂のいずれも使用することができる。

[0217]

第1の電極 613 上には、EL層 616、および第2の電極 617 がそれぞれ形成されている。ここで、陽極として機能する第1の電極 613 に用いる材料としては、仕事関数の大きい材料を用いることが望ましい。例えば、ITO膜、またはケイ素を含有したインジウム錫酸化物膜、2~20wt%の酸化亜鉛を含む酸化インジウム膜、窒化チタン膜、クロム膜、タングステン膜、Zn膜、Pt膜などの単層膜の他、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜との積層、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜との3層構造等を用いることができる。なお、積層構造とすると、配線としての抵抗も低く、良好なオーミックコンタクトがとれ、さらに陽極として機能させることができる。

[0218]

また、EL層 616 は、蒸着マスクを用いた蒸着法、インクジェット法、スピコート法等の種々の方法によって形成される。EL層 616 は、実施の形態2で説明したような構成を含んでいる。また、EL層 616 を構成する他の材料としては、低分子化合物、または高分子化合物（オリゴマー、 dendrimer を含む）であっても良い。

[0219]

さらに、EL層 616 上に形成され、陰極として機能する第2の電極 617 に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料（Al、Mg、Li、Ca、またはこれらの合金や化合物（MgAg、MgIn、AlLi等）等）を用いることが好ましい。なお、EL層 616 で生じた光が第2の電極 617 を透過させる場合には、第2の電極 617 として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜（ITO、2~20wt%の酸化亜鉛を含む酸化インジウム、ケイ素を含有したインジウム錫酸化物、酸化亜鉛（ZnO）等）との積層を用いるのが良い。

[0220]

なお、第1の電極 613、EL層 616、第2の電極 617 でもって、発光デバイスが形成されている。当該発光デバイスは実施の形態2に記載の発光デバイスである。なお、画素部は複数の発光デバイスが形成されてになっているが、本実施の形態における発光装置では、実施の形態2に記載の発光デバイスと、それ以外の構成を有する発光デバイスの両方が混在していても良い。

[0221]

さらにシール材 605 で封止基板 604 を素子基板 610 と貼り合わせることで、素子基板 610、封止基板 604、およびシール材 605 で囲まれた空間 607 に発光デバイス 618 が備えられた構造になっている。なお、空間 607 には、充填材が充填されており、不活性気体（窒素やアルゴン等）が充填される場合の他、シール材で充填される場合もある。封止基板には凹部を形成し、そこに乾燥材を設けことで水分の影響による劣化を抑制することができ、好ましい構成である。

[0222]

なお、シール材 605 にはエポキシ系樹脂やガラスフリットを用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板 604 に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP（Fiber Reinforced Plastic）、PVF（ポリビニルフロライド）、ポリエステルまたはアクリル樹脂等からなるプラスチック基板を用いることができる。

[0223]

図2には示されていないが、第2の電極上に保護膜を設けても良い。保護膜は有機樹脂膜や無機絶縁膜で形成すればよい。また、シール材605の露出した部分を覆うように、保護膜が形成されていても良い。また、保護膜は、一对の基板の表面及び側面、封止層、絶縁層、等の露出した側面を覆って設けることができる。

[0224]

保護膜には、水などの不純物を透過しにくい材料を用いることができる。したがって、水などの不純物が外部から内部に拡散することを効果的に抑制することができる。

[0225]

保護膜を構成する材料としては、酸化物、窒化物、フッ化物、硫化物、三元化合物、金属またはポリマー等を用いることができ、例えば、酸化アルミニウム、酸化ハフニウム、ハフニウムシリケート、酸化ランタン、酸化珪素、チタン酸ストロンチウム、酸化タンタル、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化ニオブ、酸化ジルコニウム、酸化スズ、酸化イットリウム、酸化セリウム、酸化スカンジウム、酸化エルビウム、酸化バナジウムまたは酸化インジウム等を含む材料や、窒化アルミニウム、窒化ハフニウム、窒化珪素、窒化タンタル、窒化チタン、窒化ニオブ、窒化モリブデン、窒化ジルコニウムまたは窒化ガリウム等を含む材料、チタンおよびアルミニウムを含む窒化物、チタンおよびアルミニウムを含む酸化物、アルミニウムおよび亜鉛を含む酸化物、マンガンおよび亜鉛を含む硫化物、セリウムおよびストロンチウムを含む硫化物、エルビウムおよびアルミニウムを含む酸化物、イットリウムおよびジルコニウムを含む酸化物等を含む材料を用いることができる。

[0226]

保護膜は、段差被覆性（ステップカバレッジ）の良好な成膜方法を用いて形成することが好ましい。このような手法の一つに、原子層堆積（ALD: Atomic Layer Deposition）法がある。ALD法を用いて形成することができる材料を、保護膜に用いることが好ましい。ALD法を用いることで緻密な、クラックやピンホールなどの欠陥が低減された、または均一な厚さを備える保護膜を形成することができる。また、保護膜を形成する際に加工部材に与える損傷を、低減することができる。

[0227]

例えばALD法を用いて保護膜を形成することで、複雑な凹凸形状を有する表面や、タッチパネルの上面、側面及び裏面にまで均一で欠陥の少ない保護膜を形成することができる。

[0228]

以上のようにして、実施の形態2に記載の発光デバイスを用いて作製された発光装置を得ることができる。

[0229]

本実施の形態における発光装置は、実施の形態2に記載の発光デバイスを用いているため、良好な特性を備えた発光装置を得ることができる。具体的には、実施の形態2に記載の発光デバイスは発光効率が良好なため、消費電力の小さい発光装置とすることが可能である。

[0230]

図3には白色発光を呈する発光デバイスを形成し、着色層（カラーフィルタ）等を設けることによってフルカラー化した発光装置の例を示す。図3Aには基板1001、下地絶縁膜1002、ゲート絶縁膜1003、ゲート電極1006、1007、1008、第1の層間絶縁膜1020、第2の層間

絶縁膜1021、周辺部1042、画素部1040、駆動回路部1041、発光デバイスの第1の電極1024W、1024R、1024G、1024B、隔壁1025、EL層1028、発光デバイスの第2の電極1029、封止基板1031、シール材1032などが図示されている。

[0231]

また、図3Aでは着色層（赤色の着色層1034R、緑色の着色層1034G、青色の着色層1034B）は透明な基材1033に設けている。また、ブラックマトリクス1035をさらに設けても良い。着色層及びブラックマトリクスが設けられた透明な基材1033は、位置合わせし、基板1001に固定する。なお、着色層、及びブラックマトリクス1035は、オーバーコート層1036で覆われている。また、図3Aにおいては、光が着色層を透過せずに外部へ出る発光層と、各色の着色層を透過して外部に光が出る発光層とがあり、着色層を透過しない光は白、着色層を透過する光は赤、緑、青となることから、4色の画素で映像を表現することができる。

[0232]

図3Bでは着色層（赤色の着色層1034R、緑色の着色層1034G、青色の着色層1034B）をゲート絶縁膜1003と第1の層間絶縁膜1020との間に形成する例を示した。このように、着色層は基板1001と封止基板1031の間に設けられていても良い。

[0233]

また、以上に説明した発光装置では、FETが形成されている基板1001側に光を取り出す構造（ボトムエミッション型）の発光装置としたが、封止基板1031側に発光を取り出す構造（トップエミッション型）の発光装置としても良い。トップエミッション型の発光装置の断面図を図4に示す。この場合、基板1001は光を通さない基板を用いることができる。FETと発光デバイスの陽極とを接続する接続電極を作製するまでは、ボトムエミッション型の発光装置と同様に形成する。その後、第3の層間絶縁膜1037を、電極1022を覆って形成する。この絶縁膜は平坦化の役割を担っていても良い。第3の層間絶縁膜1037は第2の層間絶縁膜と同様の材料の他、他の公知の材料を用いて形成することができる。

[0234]

発光デバイスの第1の電極1024W、1024R、1024G、1024Bはここでは陽極とするが、陰極であっても構わない。また、図4のようなトップエミッション型の発光装置である場合、第1の電極を反射電極とすることが好ましい。EL層1028の構成は、実施の形態2においてEL層103として説明したような構成とし、且つ、白色の発光が得られるような素子構造とする。

[0235]

図4のようなトップエミッションの構造では着色層（赤色の着色層1034R、緑色の着色層1034G、青色の着色層1034B）を設けた封止基板1031で封止を行うことができる。封止基板1031には画素と画素との間に位置するようにブラックマトリクス1035を設けても良い。着色層（赤色の着色層1034R、緑色の着色層1034G、青色の着色層1034B）やブラックマトリクスはオーバーコート層1036によって覆われていても良い。なお封止基板1031は透光性を有する基板を用いることとする。また、ここでは赤、緑、青、白の4色でフルカラー表示を行う例を示したが特に限定されず、赤、黄、緑、青の4色や赤、緑、青の3色でフルカラー表示を行ってもよい。

[0236]

トップエミッション型の発光装置では、マイクロキャビティ構造の適用が好適に行える。マイクロキ

ャビティ構造を有する発光デバイスは、第1の電極を反射電極、第2の電極を半透過・半反射電極とすることにより得られる。反射電極と半透過・半反射電極との間には少なくともEL層を有し、少なくとも発光領域となる発光層を有している。

[0237]

なお、反射電極は、可視光の反射率が40%乃至100%、好ましくは70%乃至100%であり、かつその抵抗率が $1 \times 10^{-2} \Omega \text{ cm}$ 以下の膜であるとする。また、半透過・半反射電極は、可視光の反射率が20%乃至80%、好ましくは40%乃至70%であり、かつその抵抗率が $1 \times 10^{-2} \Omega \text{ cm}$ 以下の膜であるとする。

[0238]

EL層に含まれる発光層から射出される発光は、反射電極と半透過・半反射電極とによって反射され、共振する。

[0239]

当該発光デバイスは、透明導電膜や上述の複合材料、キャリア輸送材料などの厚みを変えることで反射電極と半透過・半反射電極の間の光学的距離を変えることができる。これにより、反射電極と半透過・半反射電極との間において、共振する波長の光を強め、共振しない波長の光を減衰させることができる。

[0240]

なお、反射電極によって反射されて戻ってきた光（第1の反射光）は、発光層から半透過・半反射電極に直接入射する光（第1の入射光）と大きな干渉を起こすため、反射電極と発光層の光学的距離を $(2n-1)\lambda/4$ （ただし、 n は1以上の自然数、 λ は増幅したい発光の波長）に調節することが好ましい。当該光学的距離を調節することにより、第1の反射光と第1の入射光との位相を合わせ発光層からの発光をより増幅させることができる。

[0241]

なお、上記構成においてEL層は、複数の発光層を有する構成であっても、単一の発光層を有する構成であっても良く、例えば、上述のタンデム型発光デバイスの構成と組み合わせて、一つの発光デバイスに電荷発生層を挟んで複数のEL層を設け、それぞれのEL層に単数もしくは複数の発光層を形成する構成に適用してもよい。

[0242]

マイクロキャビティ構造を有することで、特定波長の正面方向の発光強度を強めることが可能となるため、低消費電力化を図ることができる。なお、赤、黄、緑、青の4色の副画素で映像を表示する発光装置の場合、黄色発光による輝度向上効果のうえ、全副画素において各色の波長に合わせたマイクロキャビティ構造を適用できるため良好な特性の発光装置とすることができる。

[0243]

本実施の形態における発光装置は、実施の形態2に記載の発光デバイスを用いているため、良好な特性を備えた発光装置を得ることができる。具体的には、実施の形態2に記載の発光デバイスは発光効率が良好なため、消費電力の小さい発光装置とすることが可能である。

[0244]

ここまでは、アクティブマトリクス型の発光装置について説明したが、以下からはパッシブマトリクス型の発光装置について説明する。図5には本発明を適用して作製したパッシブマトリクス型の発光装置を示す。なお、図5Aは、発光装置を示す斜視図、図5Bは図5AをX-Yで切断した断面図

である。図5において、基板951上には、電極952と電極956との間にはEL層955が設けられている。電極952の端部は絶縁層953で覆われている。そして、絶縁層953上には隔壁層954が設けられている。隔壁層954の側壁は、基板面に近くなるに伴って、一方の側壁と他方の側壁との間隔が狭くなっていくような傾斜を有する。つまり、隔壁層954の短辺方向の断面は、台形状であり、底辺（絶縁層953の面方向と同様の方向を向き、絶縁層953と接する辺）の方が上辺（絶縁層953の面方向と同様の方向を向き、絶縁層953と接しない辺）よりも短い。このように、隔壁層954を設けることで、静電気等に起因した発光デバイスの不良を防ぐことができる。また、パッシブマトリクス型の発光装置においても、実施の形態2に記載の発光デバイスを用いており、信頼性の良好な発光装置、又は消費電力の小さい発光装置とすることができる。

[0245]

以上、説明した発光装置は、マトリクス状に配置された多数の微小な発光デバイスをそれぞれ制御することが可能であるため、画像の表現を行う表示装置として好適に利用できる発光装置である。

[0246]

また、本実施の形態は他の実施の形態と自由に組み合わせることができる。

[0247]

（実施の形態4）

本実施の形態では、実施の形態2に記載の発光デバイスを照明装置として用いる例を図6を参照しながら説明する。図6Bは照明装置の上面図、図6Aは図6Bにおけるe-f断面図である。

[0248]

本実施の形態における照明装置は、支持体である透光性を有する基板400上に、第1の電極401が形成されている。第1の電極401は実施の形態2における第1の電極101に相当する。第1の電極401側から発光を取り出す場合、第1の電極401は透光性を有する材料により形成する。

[0249]

第2の電極404に電圧を供給するためのパッド412が基板400上に形成される。

[0250]

第1の電極401上にはEL層403が形成されている。EL層403は実施の形態2におけるEL層103の構成、又は発光ユニット511、512及び電荷発生層513を合わせた構成などに相当する。なお、これらの構成については当該記載を参照されたい。

[0251]

EL層403を覆って第2の電極404を形成する。第2の電極404は実施の形態2における第2の電極102に相当する。発光を第1の電極401側から取り出す場合、第2の電極404は反射率の高い材料によって形成される。第2の電極404はパッド412と接続することによって、電圧が供給される。

[0252]

以上、第1の電極401、EL層403、及び第2の電極404を有する発光デバイスを本実施の形態で示す照明装置は有している。当該発光デバイスは発光効率の高い発光デバイスであるため、本実施の形態における照明装置は消費電力の小さい照明装置とすることができる。

[0253]

以上の構成を有する発光デバイスが形成された基板400と、封止基板407とをシール材405、406を用いて固着し、封止することによって照明装置が完成する。シール材405、406はどちら

らか一方でもかまわない。また、内側のシール材 406 には乾燥剤を混ぜることもでき、これにより、水分を吸着することができ、信頼性の向上につながる。

[0254]

また、パッド 412 と第 1 の電極 401 の一部をシール材 405、406 の外に伸張して設けることによって、外部入力端子とすることができる。また、その上にコンバーターなどを搭載した IC チップ 420 などを設けても良い。

[0255]

以上、本実施の形態に記載の照明装置は、EL 素子に実施の形態 2 に記載の発光デバイスを用いており、消費電力の小さい発光装置とすることができる。

[0256]

(実施の形態 5)

本実施の形態では、実施の形態 2 に記載の発光デバイスをその一部に含む電子機器の例について説明する。実施の形態 2 に記載の発光デバイスは発光効率が良好であり、消費電力の小さい発光デバイスである。その結果、本実施の形態に記載の電子機器は、消費電力が小さい発光部を有する電子機器とすることが可能である。

[0257]

上記発光デバイス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、またはテレビジョン受信機ともいう）、コンピュータ用などのモニタ、デジタルカメラ、デジタルビデオカメラ、デジタルフォトフレーム、携帯電話機（携帯電話、携帯電話装置ともいう）、携帯型ゲーム機、携帯情報端末、音響再生装置、パチンコ機などの大型ゲーム機などが挙げられる。これらの電子機器の具体例を以下に示す。

[0258]

図 7A は、テレビジョン装置の一例を示している。テレビジョン装置は、筐体 7101 に表示部 7103 が組み込まれている。また、ここでは、スタンド 7105 により筐体 7101 を支持した構成を示している。表示部 7103 により、映像を表示することが可能であり、表示部 7103 は、実施の形態 2 に記載の発光デバイスをマトリクス状に配列して構成されている。

[0259]

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

[0260]

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

[0261]

図 7B1 はコンピュータであり、本体 7201、筐体 7202、表示部 7203、キーボード 7204、外部接続ポート 7205、ポインティングデバイス 7206 等を含む。なお、このコンピュータ

は、実施の形態 2 に記載の発光デバイスをマトリクス状に配列して表示部 7 2 0 3 に用いることにより作製される。図 7 B 1 のコンピュータは、図 7 B 2 のような形態であっても良い。図 7 B 2 のコンピュータは、キーボード 7 2 0 4、ポインティングデバイス 7 2 0 6 の代わりに第 2 の表示部 7 2 1 0 が設けられている。第 2 の表示部 7 2 1 0 はタッチパネル式となっており、第 2 の表示部 7 2 1 0 に表示された入力用の表示を指や専用のペンで操作することによって入力を行うことができる。また、第 2 の表示部 7 2 1 0 は入力用表示だけでなく、その他の画像を表示することも可能である。また表示部 7 2 0 3 もタッチパネルであっても良い。二つの画面がヒンジで接続されていることによって、収納や運搬をする際に画面を傷つける、破損するなどのトラブルの発生も防止することができる。

[0 2 6 2]

図 7 C は、携帯端末の一例を示している。携帯電話機は、筐体 7 4 0 1 に組み込まれた表示部 7 4 0 2 の他、操作ボタン 7 4 0 3、外部接続ポート 7 4 0 4、スピーカ 7 4 0 5、マイク 7 4 0 6 などを備えている。なお、携帯電話機 7 4 0 0 は、実施の形態 2 に記載の発光デバイスをマトリクス状に配列して作製された表示部 7 4 0 2 を有している。

[0 2 6 3]

図 7 C に示す携帯端末は、表示部 7 4 0 2 を指などで触れることで、情報を入力することができる構成とすることもできる。この場合、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 7 4 0 2 を指などで触れることにより行うことができる。

[0 2 6 4]

表示部 7 4 0 2 の画面は主として 3 つのモードがある。第 1 は、画像の表示を主とする表示モードであり、第 2 は、文字等の情報の入力を主とする入力モードである。第 3 は表示モードと入力モードの 2 つのモードが混合した表示+入力モードである。

[0 2 6 5]

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 7 4 0 2 を文字の入力を主とする文字入力モードとし、画面に表示させた文字の入力操作を行えばよい。この場合、表示部 7 4 0 2 の画面にキーボードまたは番号ボタンを表示させることが好ましい。

[0 2 6 6]

また、携帯端末内部に、ジャイロ、加速度センサ等の傾きを検出するセンサを有する検出装置を設けることで、携帯端末の向き（縦か横か）を判断して、表示部 7 4 0 2 の画面表示を自動的に切り替えるようにすることができる。

[0 2 6 7]

また、画面モードの切り替えは、表示部 7 4 0 2 を触れること、又は筐体 7 4 0 1 の操作ボタン 7 4 0 3 の操作により行われる。また、表示部 7 4 0 2 に表示される画像の種類によって切り替えるようにすることもできる。例えば、表示部に表示する画像信号が動画のデータであれば表示モード、テキストデータであれば入力モードに切り替える。

[0 2 6 8]

また、入力モードにおいて、表示部 7 4 0 2 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。

[0 2 6 9]

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

[0270]

図 8A は、掃除ロボットの一例を示す模式図である。

[0271]

掃除ロボット 5100 は、上面に配置されたディスプレイ 5101、側面に配置された複数のカメラ 5102、ブラシ 5103、操作ボタン 5104 を有する。また図示されていないが、掃除ロボット 5100 の下面には、タイヤ、吸い込み口等が備えられている。掃除ロボット 5100 は、その他に赤外線センサ、超音波センサ、加速度センサ、圧電センサ、光センサ、ジャイロセンサなどの各種センサを備えている。また、掃除ロボット 5100 は、無線による通信手段を備えている。

[0272]

掃除ロボット 5100 は自走し、ゴミ 5120 を検知し、下面に設けられた吸い込み口からゴミを吸引することができる。

[0273]

また、掃除ロボット 5100 はカメラ 5102 が撮影した画像を解析し、壁、家具または段差などの障害物の有無を判断することができる。また、画像解析により、配線などブラシ 5103 に絡まりそうな物体を検知した場合は、ブラシ 5103 の回転を止めることができる。

[0274]

ディスプレイ 5101 には、バッテリーの残量や、吸引したゴミの量などを表示することができる。掃除ロボット 5100 が走行した経路をディスプレイ 5101 に表示させてもよい。また、ディスプレイ 5101 をタッチパネルとし、操作ボタン 5104 をディスプレイ 5101 に設けてもよい。

[0275]

掃除ロボット 5100 は、スマートフォンなどの携帯電子機器 5140 と通信することができる。カメラ 5102 が撮影した画像は、携帯電子機器 5140 に表示させることができる。そのため、掃除ロボット 5100 の持ち主は、外出先からでも、部屋の様子を知ることができる。また、ディスプレイ 5101 の表示をスマートフォンなどの携帯電子機器で確認することもできる。

[0276]

本発明の一態様の発光装置はディスプレイ 5101 に用いることができる。

[0277]

図 8B に示すロボット 2100 は、演算装置 2110、照度センサ 2101、マイクロフォン 2102、上部カメラ 2103、スピーカ 2104、ディスプレイ 2105、下部カメラ 2106 および障害物センサ 2107、移動機構 2108 を備える。

[0278]

マイクロフォン 2102 は、使用者の話し声及び環境音等を検知する機能を有する。また、スピーカ 2104 は、音声を発する機能を有する。ロボット 2100 は、マイクロフォン 2102 およびスピーカ 2104 を用いて、使用者とコミュニケーションをとることが可能である。

[0279]

ディスプレイ 2105 は、種々の情報の表示を行う機能を有する。ロボット 2100 は、使用者の望

みの情報をディスプレイ 2105 に表示することが可能である。ディスプレイ 2105 は、タッチパネルを搭載していてもよい。また、ディスプレイ 2105 は取り外しのできる情報端末であっても良く、ロボット 2100 の定位置に設置することで、充電およびデータの受け渡しを可能とする。

[0280]

上部カメラ 2103 および下部カメラ 2106 は、ロボット 2100 の周囲を撮像する機能を有する。また、障害物センサ 2107 は、移動機構 2108 を用いてロボット 2100 が前進する際の進行方向における障害物の有無を察知することができる。ロボット 2100 は、上部カメラ 2103、下部カメラ 2106 および障害物センサ 2107 を用いて、周囲の環境を認識し、安全に移動することが可能である。本発明の一態様の発光装置はディスプレイ 2105 に用いることができる。

[0281]

図 8C はゴーグル型ディスプレイの一例を表す図である。ゴーグル型ディスプレイは、例えば、筐体 5000、表示部 5001、スピーカ 5003、LED ランプ 5004、操作キー 5005（電源スイッチ、又は操作スイッチを含む）、接続端子 5006、センサ 5007（力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、光、液、磁気、温度、化学物質、音声、時間、硬度、電場、電流、電圧、電力、放射線、流量、湿度、傾度、振動、におい、又は赤外線を測定する機能を含むもの）、マイクロフォン 5008、表示部 5002、支持部 5012、イヤホン 5013 等を有する。

[0282]

本発明の一態様の発光装置は表示部 5001 および表示部 5002 に用いることができる。

[0283]

図 9 は、実施の形態 2 に記載の発光デバイスを、照明装置である電気スタンドに用いた例である。図 9 に示す電気スタンドは、筐体 2001 と、光源 2002 を有し、光源 2002 としては、実施の形態 3 に記載の照明装置を用いても良い。

[0284]

図 10 は、実施の形態 2 に記載の発光デバイスを、室内の照明装置 3001 として用いた例である。実施の形態 2 に記載の発光デバイスは発光効率の高い発光デバイスであるため、消費電力の小さい照明装置とすることができる。また、実施の形態 2 に記載の発光デバイスは大面積化が可能であるため、大面積の照明装置として用いることができる。また、実施の形態 2 に記載の発光デバイスは、薄型であるため、薄型化した照明装置として用いることが可能となる。

[0285]

実施の形態 2 に記載の発光デバイスは、自動車のフロントガラスやダッシュボードにも搭載することができる。図 11 に実施の形態 2 に記載の発光デバイスを自動車のフロントガラスやダッシュボードに用いる一態様を示す。表示領域 5200 乃至表示領域 5203 は実施の形態 2 に記載の発光デバイスを用いて設けられた表示である。

[0286]

表示領域 5200 と表示領域 5201 は自動車のフロントガラスに設けられた実施の形態 2 に記載の発光デバイスを搭載した表示装置である。実施の形態 2 に記載の発光デバイスは、第 1 の電極と第 2 の電極を透光性を有する電極で作製することによって、反対側が透けて見える、いわゆるシースルー状態の表示装置とすることができる。シースルー状態の表示であれば、自動車のフロントガラスに設置したとしても、視界の妨げになることなく設置することができる。なお、駆動のためのトランジスタなどを設ける場合には、有機半導体材料による有機トランジスタや、酸化物半導体を用いたトラ

ンジスタなど、透光性を有するトランジスタを用いると良い。

[0287]

表示領域5202はピラー部分に設けられた実施の形態2に記載の発光デバイスを搭載した表示装置である。表示領域5202には、車体に設けられた撮像手段からの映像を映し出すことによって、ピラーで遮られた視界を補完することができる。また、同様に、ダッシュボード部分に設けられた表示領域5203は車体によって遮られた視界を、自動車の外側に設けられた撮像手段からの映像を映し出すことによって、死角を補い、安全性を高めることができる。見えない部分を補完するように映像を映すことによって、より自然に違和感なく安全確認を行うことができる。

[0288]

表示領域5203はまたナビゲーション情報、速度計や回転計、走行距離、燃料計、ギア状態、空調の設定などを表示することで、様々な情報を提供することができる。表示は使用者の好みに合わせて適宜その表示項目やレイアウトを変更することができる。なお、これら情報は表示領域5200乃至表示領域5202にも設けることができる。また、表示領域5200乃至表示領域5203は照明装置として用いることも可能である。

[0289]

また、図12A、図12Bに、折りたたみ可能な携帯情報端末5150を示す。折りたたみ可能な携帯情報端末5150は筐体5151、表示領域5152および屈曲部5153を有している。図12Aに展開した状態の携帯情報端末5150を示す。図12Bに折りたたんだ状態の携帯情報端末を示す。携帯情報端末5150は、大きな表示領域5152を有するにも関わらず、折りたためばコンパクトで可搬性に優れる。

[0290]

表示領域5152は屈曲部5153により半分に折りたたむことができる。屈曲部5153は伸縮可能な部材と複数の支持部材とで構成されており、折りたたむ場合は、伸縮可能な部材が伸び、屈曲部5153は2mm以上、好ましくは3mm以上の曲率半径を有して折りたたまれる。

[0291]

なお、表示領域5152は、タッチセンサ（入力装置）を搭載したタッチパネル（入出力装置）であってもよい。本発明の一態様の発光装置を表示領域5152に用いることができる。

[0292]

また、図13A～図13Cに、折りたたみ可能な携帯情報端末9310を示す。図13Aに展開した状態の携帯情報端末9310を示す。図13Bに展開した状態又は折りたたんだ状態の一方から他方に変化する途中の状態の携帯情報端末9310を示す。図13Cに折りたたんだ状態の携帯情報端末9310を示す。携帯情報端末9310は、折りたたんだ状態では可搬性に優れ、展開した状態では、継ぎ目のない広い表示領域により表示の一覧性に優れる。

[0293]

表示パネル9311はヒンジ9313によって連結された3つの筐体9315に支持されている。なお、表示パネル9311は、タッチセンサ（入力装置）を搭載したタッチパネル（入出力装置）であってもよい。また、表示パネル9311は、ヒンジ9313を介して2つの筐体9315間を屈曲させることにより、携帯情報端末9310を展開した状態から折りたたんだ状態に可逆的に変形させることができる。本発明の一態様の発光装置を表示パネル9311に用いることができる。

[0294]

なお、本実施の形態に示す構成は、実施の形態1乃至実施の形態4に示した構成を適宜組み合わせることができる。

[0295]

以上の様に実施の形態2に記載の発光デバイスを備えた発光装置の適用範囲は極めて広く、この発光装置をあらゆる分野の電子機器に適用することが可能である。実施の形態2に記載の発光デバイスを用いることにより消費電力の小さい電子機器を得ることができる。

[実施例1]

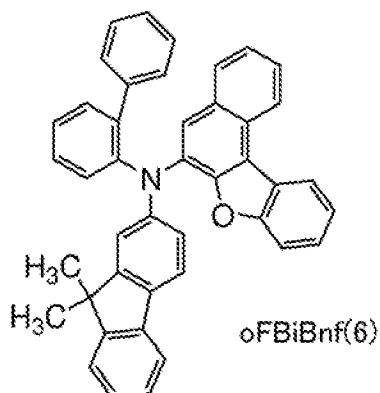
[0296]

《合成例1》

本合成例では、実施の形態1で構造式(5-106)として示したN-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミン(略称: oFBiBnf(6))の合成方法について説明する。oFBiBnf(6)の構造式を以下に示す。

[0297]

[化45]



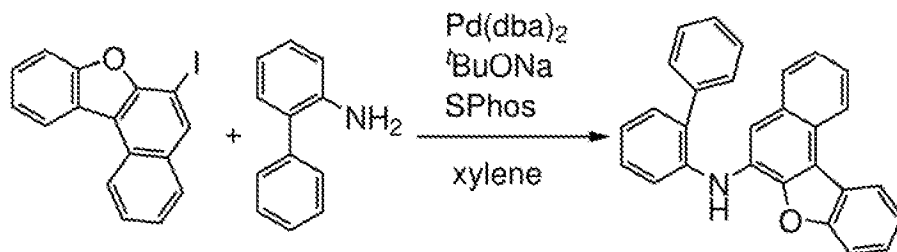
[0298]

＜ステップ1: N-(1,1'-ビフェニル-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミンの合成＞

5.2 g (15 mmol) の6-ヨードベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フランと、2.5 g (15 mmol) の2-ビフェニルアミンと、0.12 g (0.30 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',6'-ジメトキシビフェニルを、還流管を付けた200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に2.9 g (30 mmol) のナトリウム tert-ブトキシドと、110 mLのキシレンを加え、減圧脱気と窒素置換を3回ずつ行った。フラスコ内に86 mg (0.15 mmol) のビス(ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム)(0)を加え、110℃で3時間攪拌した。攪拌後、吸引濾過により得られた混合物から不溶物を除去した。得られたろ液に水を加え、水層をトルエンで抽出した。得られた有機層を水で2回洗浄した後飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然ろ過し、無水硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮し、目的物の褐色固体を5.5 g、収率95%で得た。ステップ1の合成スキームを以下に示す。

[0299]

[化46]



[0300]

上記ステップ1で得られた褐色固体の核磁気共鳴分光法 ($^1\text{H-NMR}$) による分析結果を下記に示す。これにより、ステップ1によってN-(1,1'-ビフェニル-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミンが得られたことがわかった。

$^1\text{H-NMR}$ (ジクロロメタン- d_2 , 300MHz): δ = 8.52 (d, J = 7.8 Hz, 1H)、7.91 (d, J = 8.7 Hz, 1H)、7.84 (d, J = 8.4 Hz, 1H)、7.68–7.32 (m, 14H)、7.19 (t, J = 4.2 Hz, 1H)、6.39 (s, 1H)

[0301]

<ステップ2: N-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミン(略称: oFBiBnf(6))の合成>

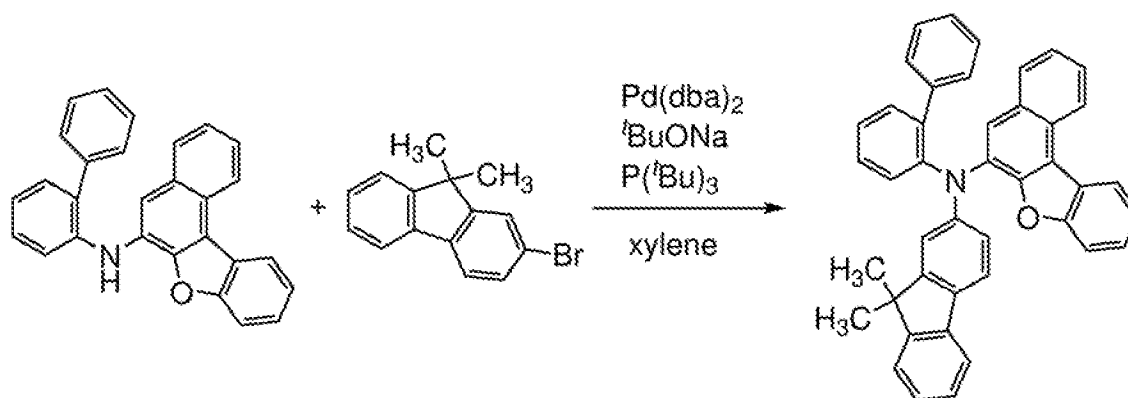
2.0 g (5.2 mmol) のステップ1で得られたN-(1,1'-ビフェニル-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミンと、1.4 g (5.2 mmol) の2-ブロモ-9,9-ジメチルフルオレンを、還流管を付けた200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に1.0 g (10 mmol) のナトリウム *tert*-ブトキシドと、0.30 mLのトリ-*tert*-ブチルホスフィン(10 wt%ヘキサン溶液)と、50 mLのキシレンを加え、減圧脱気と窒素置換を3回ずつ行なった。フラスコ内に30 mg (0.51 mmol) のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加え、90°Cで6時間攪拌した。攪拌後、反応物に水を加え、水層をトルエンで抽出した。得られた有機層を水で2回洗浄し、続いて飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然ろ過し、無水硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮したところ、目的物が含まれる黄色固体を2.9 g、収率96%で得た。

[0302]

得られた黄色固体のうち、2.4 gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、アルゴンを15 mL/minで流しながら、圧力3.6 Pa、200°Cで固体を16時間加熱して行った。昇華精製後に目的物の淡黄色固体を1.6 g、回収率66%で得た。ステップ2の合成スキームを以下に示す。

[0303]

[化47]



[0304]

得られた固体の ^1H -NMRの数値データを以下に示す。また、 ^1H -NMRチャートを図14Aおよび図14Bに示す。これにより、本合成例によってoFBiBnf (6) が得られたことがわかった。

^1H NMR (ジクロロメタン- d_2 , 300MHz): δ = 8.53 (d, J = 8.4 Hz, 1H)、8.38–8.34 (m, 1H)、7.73 (d, J = 8.4 Hz, 1H)、7.58 (t, J = 6.6 Hz, 2H)、7.48–7.20 (m, 15H)、6.91–6.85 (m, 4H)、6.77 (t, J = 7.5 Hz, 1H)、1.24 (s, 6H)

[0305]

次に、oFBiBnf (6) のトルエン溶液および固体薄膜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。固体薄膜は石英基板上に真空蒸着法にて作製した。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計 (溶液: 日本分光株式会社製、V-550、薄膜: (株) 日立ハイテクノロジーズ製、U-4100) を用いた。なお溶液の吸収スペクトルは、石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いて算出し、薄膜の吸収スペクトルは、基板を含めた透過率と反射率から求めた吸光度 ($-\log_{10} [\%T / (100 - \%R)]$) より算出した。なお%Tは透過率、%Rは反射率を表す。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) を用いた。

[0306]

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図15に示す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図16に示す。図15の結果より、oFBiBnf (6) のトルエン溶液では、382 nm、337 nm、311 nm付近にショルダーピークを含む吸収ピークが見られ、429 nm (励起波長 377 nm) に発光波長のピークが見られた。また、図16の結果より、oFBiBnf (6) の固体薄膜では、385 nm、339 nm、315 nm、248 nm付近にショルダーピークを含む吸収ピークが見られ、445 nm付近 (励起波長 370 nm) に発光波長のピークが見られた。

[0307]

oFBiBnf (6) のHOMO準位およびLUMO準位をサイクリックボルタンメトリ (CV) 測定を元に算出した。算出方法を以下に示す。

[0308]

測定装置として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。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 (DM

F) ((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 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。

[0309]

また、作用電極としては白金電極 (ビー・エー・エス (株) 製、PTE 白金電極) を、補助電極としては白金電極 (ビー・エー・エス (株) 製、VC-3 用 Pt カウンター電極 (5 cm)) を、参照電極としては Ag/Ag^+ 電極 (ビー・エー・エス (株) 製、RE7 非水溶媒系参照電極) をそれぞれ用いた。なお、測定は室温 (20 以上 25°C 以下) で行った。

[0310]

また、CV 測定時のスキャン速度は、 0.1 V/sec に統一し、参照電極に対する酸化電位 E_a [V] および還元電位 E_c [V] を測定した。 E_a は酸化-還元波の中間電位とし、 E_c は還元-酸化波の中間電位とした。ここで、本実施例で用いる参照電極の真空準位に対するポテンシャルエネルギーは、 -4.94 [eV] であることが分かっているため、 $\text{HOMO 準位 [eV]} = -4.94 - E_a$ 、 $\text{LUMO 準位 [eV]} = -4.94 - E_c$ という式から、HOMO 準位および LUMO 準位をそれぞれ求めることができる。

[0311]

また、CV 測定を 100 回繰り返し行い、 100 サイクル目の測定での酸化-還元波と、 1 サイクル目の酸化-還元波を比較して、化合物の電気的安定性を調べた。

[0312]

この結果、 oFBiBnf (6) の酸化電位 E_a [V] の測定結果より、HOMO 準位は -5.49 eV であることがわかった。一方、還元電位 E_c [V] の測定結果より、LUMO 準位は -2.36 eV であることがわかった。また、酸化-還元波の繰り返し測定の結果より、 1 サイクル目と 100 サイクル経過後の波形と比較したところ、 E_a 測定においては 92% 、 E_c 測定においては 95% のピーク強度を保っていたことから、 oFBiBnf (6) は酸化及び還元に対する耐性が非常に良好であることが確認された。

[0313]

また、 oFBiBnf (6) の示差走査熱量測定 (DSC 測定) を、パーキンエルマー社製、Pyris 1 DSC を用いて測定した。示差走査熱量測定は、昇温速度 40°C/min にて、 -10°C から 270°C まで昇温した後、同温度で 1 分間保持してから降温速度 100°C/min にて -10°C まで冷却する操作を 2 回連続で行った。 2 サイクル目の DSC 測定結果から、 oFBiBnf (6) のガラス転移点は 119°C であることが明らかとなり、非常に高い耐熱性を有する物質であることが示された。

[0314]

また、 oFBiBnf (6) の示差熱分析 (Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis) を行った。測定には高真空差動型示差熱天秤 (ブルカー・エイエクセス株式会社製、TG-DTA2410SA) を用いた。測定は、大気圧において、昇温速度 10°C/min 、窒素気流下 (流速 200 mL/min) の条件で行った。熱重量測定-示差熱分析において、熱重量測定から求めた重量が測定開始時の -5% となる温度 (分解温度) は 366°C であることがわかり、良好な昇華性を有する物質であることが示された。

[0328]

以上の結果から、本発明の一態様の有機化合物は、高い耐熱性と良好な昇華性を併せ持ち、耐熱性の高い有機光デバイス（発光デバイス及び受光デバイス）を提供でき、また、デバイス作製の生産性を高くできることが確認された。

[実施例2]

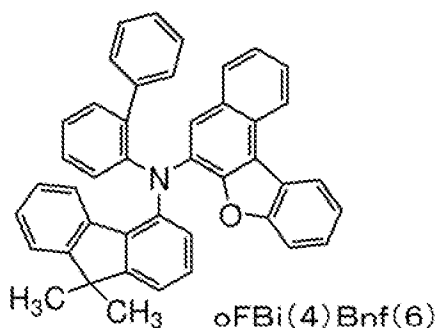
[0315]

《合成例2》

本合成例では、実施の形態1で構造式(5-107)として示したN-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミン(略称: oFBi(4)Bnf(6))の合成方法について説明する。oFBi(4)Bnf(6)の構造式を以下に示す。

[0316]

[化48]



[0317]

＜ステップ1: N-(1,1'-ビフェニル-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミンの合成＞

実施例1の合成例1におけるステップ1と同様に合成した。

[0318]

＜ステップ2: N-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミン(略称: oFBi(4)Bnf(6))の合成＞

2.0 g (5.2 mmol)のステップ1で得られたN-(1,1'-ビフェニル-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミンと、1.4 g (5.2 mmol)の4-ブロモ-9-ジメチルフルオレンを、還流管を付けた200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に1.0 g (10 mmol)のナトリウム tert-ブトキシドと、0.30 mLのトリ-tert-ブチルホスフィン(10 wt%ヘキサン溶液)と、50 mLのキシレンを加え、減圧脱気と窒素置換を3回ずつ行なった。フラスコ内に30 mg (0.51 mmol)のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加え、80℃で16時間攪拌した。攪拌後、反応物に水を加え、水層をトルエンで抽出した。得られた有機層を水で2回洗浄し、続いて飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然ろ過し、無水硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮したところ、目的物が含まれる黄色固体を2.9 g得られた。この黄色固体を再結晶(トルエン/ヘキサン)で精製し、目的物の白色固体を1.4 g、収率47%で

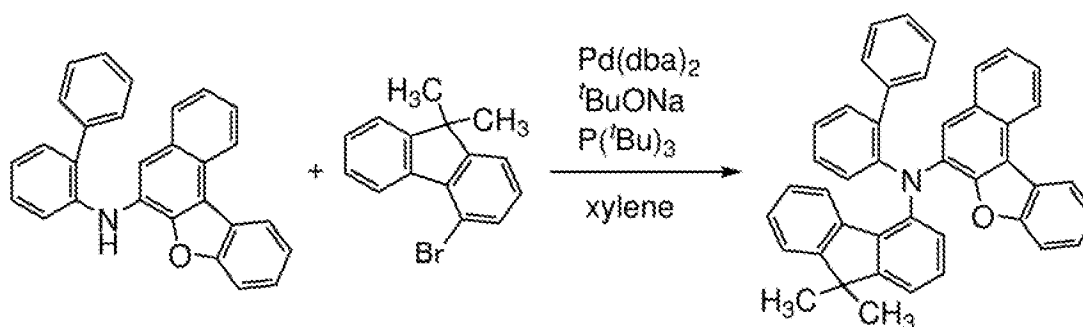
得た。

[0319]

得られた1.4gの白色固体をトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、アルゴンを15mL/minで流しながら、圧力3.6Pa、205℃で白色固体を15時間加熱して行った。昇華精製後に目的物の白色固体を1.1g、回収率78%で得た。合成スキームを以下に示す。

[0320]

[化49]



[0321]

得られた固体の¹H-NMRの数値データを以下に示す。また、¹H-NMRチャートを図17Aおよび図17Bに示す。これにより、本合成例によって、oFBi(4)Bnf(6)が得られたことがわかった。

¹H NMR (ジクロロメタン-d₂, 300MHz): δ = 8.57 (d, J = 7.8 Hz, 1H)、8.50–8.44 (m, 1H)、7.66–7.50 (m, 5H)、7.42–7.03 (m, 12H)、6.97 (t, J = 7.5 Hz, 1H)、6.83 (d, J = 7.5 Hz, 1H)、6.65–6.55 (m, 4H)、1.29 (s, 6H)

[0322]

次に、oFBi(4)Bnf(6)のトルエン溶液および固体薄膜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。測定方法および測定装置は、実施例1と同様であるため、繰り返しとなる記載を省略する。

[0323]

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図18に示す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図19に示す。図18の結果より、oFBi(4)Bnf(6)のトルエン溶液では、357nm、328nm、301nm付近にショルダーピークを含む吸収ピークが見られ、405nm(励起波長353nm)に発光波長のピークが見られた。また、図19の結果より、oFBi(4)Bnf(6)の固体薄膜では、360nm、332nm、304nm、282nm付近にショルダーピークを含む吸収ピークが見られ、423nm付近(励起波長360nm)に発光波長のピークが見られた。

[0324]

oFBi(4)Bnf(6)のHOMO準位およびLUMO準位をサイクリックボルタンメトリ(CV)測定を元に算出した。算出方法、測定方法および測定装置は、実施例1と同様であるため、繰り返しとなる記載を省略する。

[0325]

この結果、o F B i (4) B n f (6) のHOMO準位は -5.64 eV 、LUMO準位は -2.32 eV であることがわかった。また、酸化－還元波の繰り返し測定において1サイクル目と100サイクル後の波形と比較したところ、E a測定においては79%、E c測定においては97%のピーク強度を保っていたことから、o F B i (4) B n f (6) は酸化及び還元に対する耐性が非常に良好であることが確認された。

[0326]

また、o F B i (4) B n f (6) の示差走査熱量測定(DSC測定)を、パーキンエルマー社製、Pyris 1 DSCを用いて測定した。示差走査熱量測定は、昇温速度 $40^\circ\text{C}/\text{min}$ にて、 -10°C から 253°C まで昇温した後、同温度で1分間保持してから降温速度 $100^\circ\text{C}/\text{min}$ にて -10°C まで冷却する操作を2回連続で行った。2サイクル目のDSC測定結果から、o F B i (4) B n f (6) のガラス転移点は 114°C であることが明らかとなり、非常に高い耐熱性を有する物質であることが示された。

[0327]

また、o F B i (4) B n f (6) の示差熱分析(Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis)を行った。測定には高真空差動型示差熱天秤(ブルカー・エイエックスエス株式会社製、TG-DTA 2410 SA)を用いた。測定は、大気圧において、昇温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 、窒素気流下(流速 $200\text{ mL}/\text{min}$)の条件で行った。熱重量測定－示差熱分析において、熱重量測定から求めた重量が測定開始時の5%となる温度(分解温度)は 343°C であることがわかり、良好な昇華性を有する物質であることが示された。

[0328]

以上の結果から、本発明の一態様の有機化合物は、高い耐熱性と良好な昇華性を併せ持ち、耐熱性の高い有機光デバイス(発光デバイス及び受光デバイス)を提供でき、また、デバイス作製の生産性を高くできることが確認された。

[実施例3]

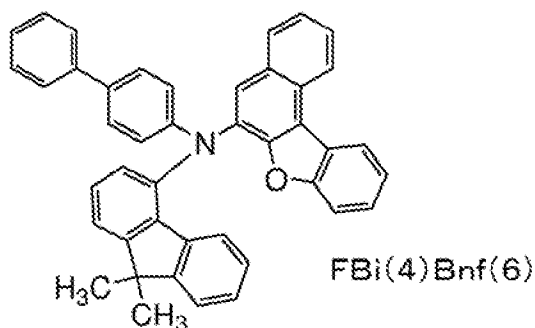
[0329]

《合成例3》

本合成例では、実施の形態1で構造式(5-59)として示したN-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミン(略称:F B i (4) B n f (6))の合成方法について説明する。F B i (4) B n f (6)の構造式を以下に示す。

[0330]

[化50]



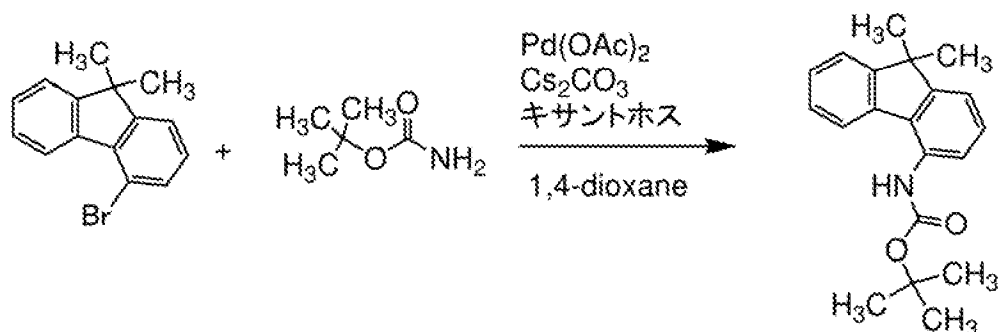
[0331]

<ステップ1：N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル)tertブトキシカルボニルアミンの合成>

5.4 g (20 mmol) の4-ブロモ-9,9-ジメチル-9H-フルオレンと、2.3 g (20 mmol) のカルバミン酸tertブチルと、0.23 g (0.40 mmol) の4,5-ビス(ジフェニルホスフィノ)-9,9-ジメチルキサンテン (略称：キサントホス) と、13 g (40 mmol) の炭酸セシウムを、還流管を付けた200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に100 mLの無水1,4-ジオキサンを加えた後、この混合物を減圧脱気した。フラスコ内を窒素気流下にしてから、この混合物を60℃で攪拌し、55 mg 0.20 mmol) の酢酸パラジウム(II)を加えてから、80℃で3時間攪拌した。攪拌後、析出物を吸引ろ過で除去したのち、混合物を500 mLの分液ロートを用いて約100 mLの水で3回洗浄した。洗浄により得られた水層を約200 mLのトルエンで3回抽出し、得られた抽出液と有機層を合わせて、約300 mLの飽和食塩水で1回洗浄した。得られた有機層に無水硫酸マグネシウムを加えて1時間放置したのち、自然ろ過した。得られたろ液を濃縮して得た化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒：トルエン：酢酸エチル=9:1) で精製したところ、目的物の白色固体を5.5 g、収率88%で得た。ステップ1の合成スキームを以下に示す。

[0332]

[化51]



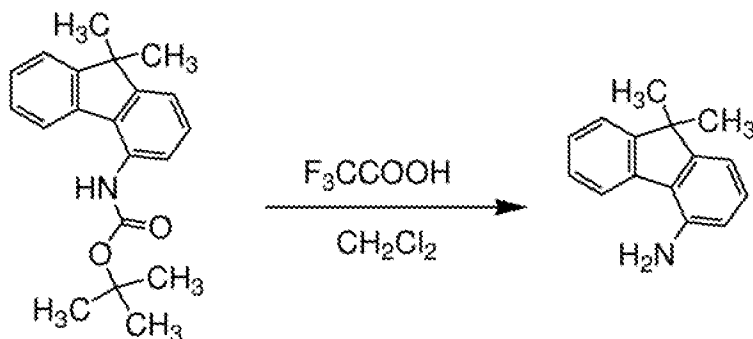
[0333]

<ステップ2：9,9-ジメチル-9H-フルオレン-4-アミンの合成>

5.5 g (18 mmol) のステップ1で得られたN-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル)tertブトキシカルボニルアミンと、100 mLのジクロロメタンを、1000 mLナスフラスコに入れ、フラスコ内を窒素気流下にした。この溶液に5.2 mL (8.1 g, 71 mmol) のトリフルオロ酢酸を滴下ロートより5分かけて滴下したのち、室温で約16時間攪拌した。攪拌後ナスフラスコを氷浴してから、100 mLの水酸化カリウム溶液(0.7 mmol)を加えて中和した。得られた混合物を、500 mL分液ロートを用いて有機相と水相に分け、有機相を約100 mLの水で3回洗浄した。洗浄に用いた水を200 mLのトルエンで3回抽出し、得られた抽出液と有機相を合わせて約200 mLの飽和食塩水で洗浄した。洗浄後得られた有機相に無水硫酸マグネシウムを加えて1時間放置した後、自然ろ過し、得られたろ液を濃縮した。得られた化合物を真空乾燥したところ、目的物の白色固体を3.2 g、収率86%で得た。ステップ2の合成スキームを以下に示す。

[0334]

[化52]



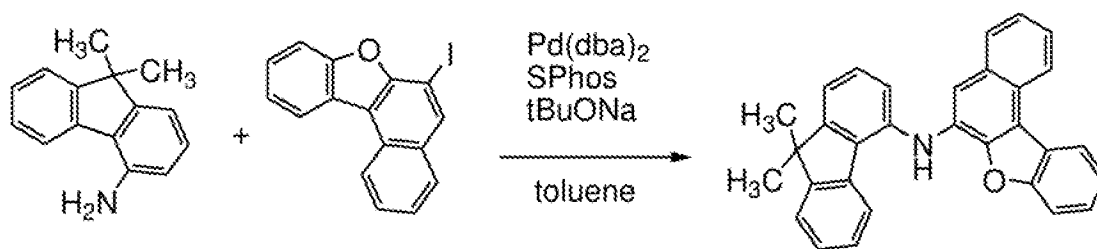
[0335]

<ステップ3：N-（9，9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル）ベンゾ[b]ナフト[1，2-d]フラン-6-アミンの合成>

1. 5 g (7.2 mmol) のステップ2で得られた9，9-ジメチル-9H-フルオレン-4-アミンと、2. 5 g (7.2 mmol) の6-ヨードベンゾ[b]ナフト[1，2-d]フランと、0.18 g (0.4 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2'，6'-ジメトキシビフェニル(sphos)と、1.5 g (15 mmol) のt-ブトキシナトリウムを、還流管を付けた200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に40 mLのトルエンを加え、減圧脱気を行った後、フラスコ内を窒素気流下にした。この混合物を60℃で攪拌し、同温度でフラスコ内に0.11 g (0.20 mmol) のビス(ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム)(0)を加えた後、80℃で3時間攪拌した。攪拌後、得られた混合物を1 Lの分液ロートを用いて約100 mLの水で3回洗浄した。洗浄に用いた水を約100 mLのトルエンで3回抽出し、得られた抽出液と有機相を合わせて約200 mLの飽和食塩水で洗浄した。得られた有機相に無水硫酸マグネシウムを加えて1時間放置したのち、この混合物を自然ろ過し、得られたろ液を濃縮し、濃褐色の化合物を3.5 g得た。得られた化合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒：ヘキサン：トルエン=2：1)により精製したところ、目的物を1.8 g、収率59%で得た。ステップ3の合成スキームを以下に示す。

[0336]

[化53]



[0337]

<ステップ4：N-（1，1'-ビフェニル-4-イル）-N-（9，9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル）ベンゾ[b]ナフト[1，2-d]フラン-6-アミン(略称：FBi(4)Bnf(6))の合成>

1. 8 g (4.1 mmol) のステップ3で得られたN-（9，9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル）ベンゾ[b]ナフト[1，2-d]フラン-6-アミンと、0.96 g (4.1 mmol) の4-ブロモビフェニルを、還流管を付けた200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換

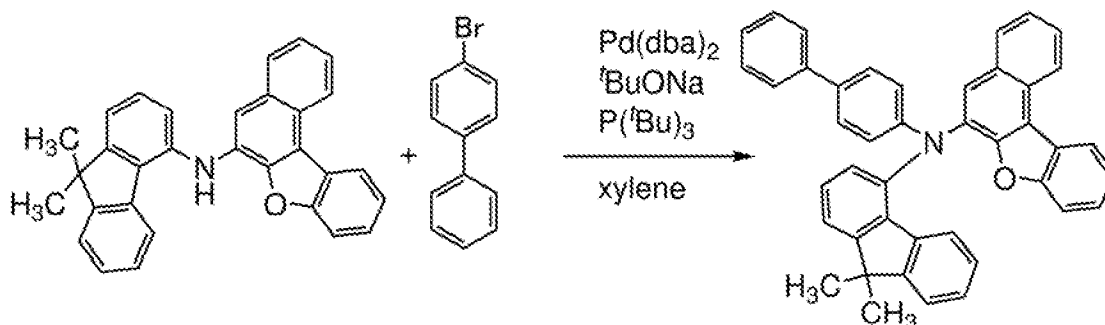
した。フラスコ内に0.80 g (8.3 mmol) のナトリウム *tert*-ブトキシドと、0.30 mL のトリ-*tert*-ブチルホスフィン (10 wt % ヘキサン溶液) と、25 mL のキシレンを加え、減圧脱気と窒素置換を3回ずつ行なった。フラスコ内に24 mg (0.41 mmol) のビス (ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム) (0) を加え、80 °C で4時間攪拌した。攪拌後、反応物に水を加え、水層をトルエンで抽出した。得られた有機層を水で2回洗浄し、続いて飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然ろ過し、無水硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮したところ、淡黄色固体を3.4 g 得た。得られた淡黄色固体を高速液体クロマトグラフィー (HPLC) (移動相: クロロホルム) により精製したところ、目的物の白色固体を2.2 g、収率93%で得た。

[0338]

得られた白色固体のうち、1.8 g をトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、アルゴンを15 mL/min で流しながら、圧力3.1 Pa、230 °C で固体を16時間加熱して行った。昇華精製後に目的物の白色固体を1.2 g、回収率66%で得た。ステップ4の合成スキームを以下に示す。

[0339]

[化54]



[0340]

得られた固体の¹H-NMRの数値データを以下に示す。また、¹H-NMRチャートを図20Aおよび図20Bに示す。これにより、本合成例においてF B i (4) B n f (6) が得られたことがわかった。

¹H NMR (ジクロロメタン-d₂, 300 MHz): δ = 8.61 (d, J = 8.4 Hz, 1H)、8.45–8.42 (m, 1H)、7.84 (d, J = 7.8 Hz, 1H)、7.78 (d, J = 8.1 Hz, 1H)、7.66–7.18 (m, 18H)、7.03–6.96 (m, 3H)、1.57 (s, 6H)

[0341]

次に、F B i (4) B n f (6) のトルエン溶液および固体薄膜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。測定方法および測定装置は、実施例1と同様であるため、繰り返しとなる記載を省略する。

[0342]

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図21に示す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図22に示す。図21の結果より、F B i (4) B n f (6) のトルエン溶液では、371 nm、336 nm、307 nm、283 nm付近

にショルダーピークを含む吸収ピークが見られ、428 nm（励起波長370 nm）に発光波長のピークが見られた。また、図22の結果より、F B i（4）B n f（6）の固体薄膜では、374 nm、337 nm、309 nm、285 nm付近にショルダーピークを含む吸収ピークが見られ、428 nm付近（励起波長350 nm）に発光波長のピークが見られた。

[0343]

F B i（4）B n f（6）のHOMO準位およびLUMO準位をサイクリックボルタンメトリ（CV）測定を元に算出した。算出方法を以下に示す。算出方法、測定方法および測定装置は、実施例1と同様であるため、繰り返しとなる記載を省略する。

[0344]

この結果、F B i（4）B n f（6）のHOMO準位は-5.64 eV、LUMO準位は-2.40 eVであることがわかった。また、酸化-還元波の繰り返し測定において1サイクル目と100サイクル後の波形と比較したところ、E_a測定においては79%、E_c測定においては93%のピーク強度を保っていたことから、F B i（4）B n f（6）は酸化及び還元に対する耐性が良好であることが確認された。

[0345]

また、F B i（4）B n f（6）の示差走査熱量測定（DSC測定）を、パーキンエルマー社製、Pyris 1 DSCを用いて測定した。示差走査熱量測定は、昇温速度40°C/minにて、-10°Cから280°Cまで昇温した後、同温度で1分間保持してから降温速度100°C/minにて-10°Cまで冷却する操作を2回連続で行った。2サイクル目のDSC測定結果から、F B i（4）B n f（6）のガラス転移点は134°Cであることが明らかとなり、非常に高い耐熱性を有する物質であることが示された。

[0346]

また、F B i（4）B n f（6）の示差熱分析（Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis）を行なった。測定には高真空差動型示差熱天秤（ブルカー・エイエックスエス株式会社製、TG-DTA2410SA）を用いた。測定は、大気圧において、昇温速度10°C/min、窒素気流下（流速200 mL/min）の条件で行った。熱重量測定-示差熱分析において、熱重量測定から求めた重量が測定開始時の-5%となる温度（分解温度）は390°Cであることがわかり、良好な昇華性を有する物質であることが示された。

[0328]

以上の結果から、本発明の一態様の有機化合物は、高い耐熱性と良好な昇華性を併せ持ち、耐熱性の高い有機光デバイス（発光デバイス及び受光デバイス）を提供でき、また、デバイス作製の生産性を高くできることが確認された。

[実施例4]

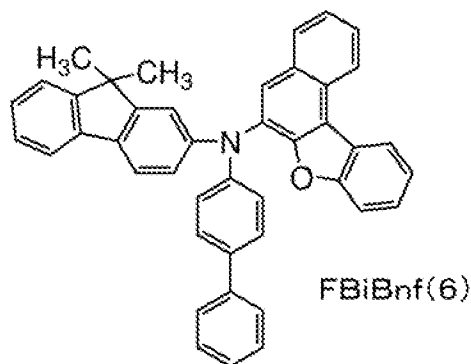
[0347]

《合成例4》

本合成例では、実施の形態1で構造式（5-58）として示したN-（1,1'-ビフェニル-4-イル）-N-（9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル）ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミン（略称：F B i B n f（6））の合成方法について説明する。F B i B n f（6）の構造式を以下に示す。

[0348]

[化55]



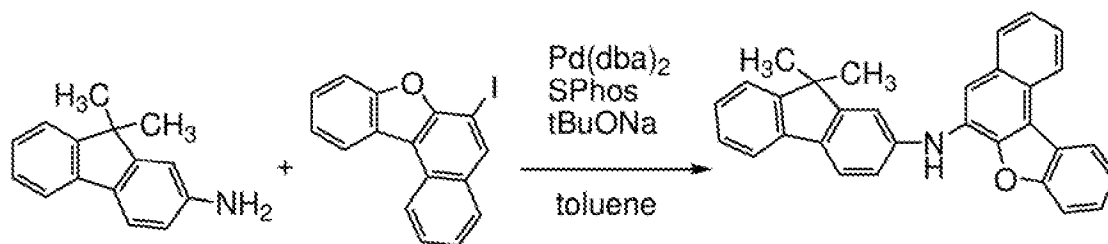
[0349]

<ステップ1：N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル) ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-6-アミンの合成>

2. 1 g (10 mmol) の9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミンと、3.4 g (10 mmol) の6-ヨードベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フランと、0.84 mg (0.2 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',6'-ジメトキシビフェニル (s p h o s) と、2.0 g (20 mmol) のt-ブトキシナトリウムを、還流管を付けた200 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に50 mLのトルエンを加え、減圧脱気を行った後、フラスコ内を窒素気流下にした。この混合物を60℃で攪拌し、同温度でフラスコ内に60 mg (0.11 mmol) のビス (ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム) (0) を加えた後、80℃で7時間攪拌した。攪拌後、得られた混合物に600 mLのトルエンを加えて100℃で加熱攪拌をした。この混合物を同温度で、アルミナ、フロリジル (和光純薬工業株式会社、カタログ番号：066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号：537-02305) を通してろ過した。得られたろ液を濃縮して得た固体を、エタノール300 mLで再結晶を行ったところ、目的物の白色固体を2.5 g、収率58%で得た。ステップ1の合成スキームを以下に示す。

[0350]

[化56]



[0351]

<ステップ2：N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-6-アミン (略称：FBiBnf(6)) の合成>

1. 1 g (2.5 mmol) のステップ1で得たN-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル) ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-6-アミンと、0.58 g (2.5 mmol) の4-ブロモビフェニルと、0.86 mg (0.2 mmol) の2-ジ-tert-ブチルホスフィノ-2',4',6'-トリイソプロピルビフェニル (t B u x p h o s) と、0.52 g (5.0 mmol) の

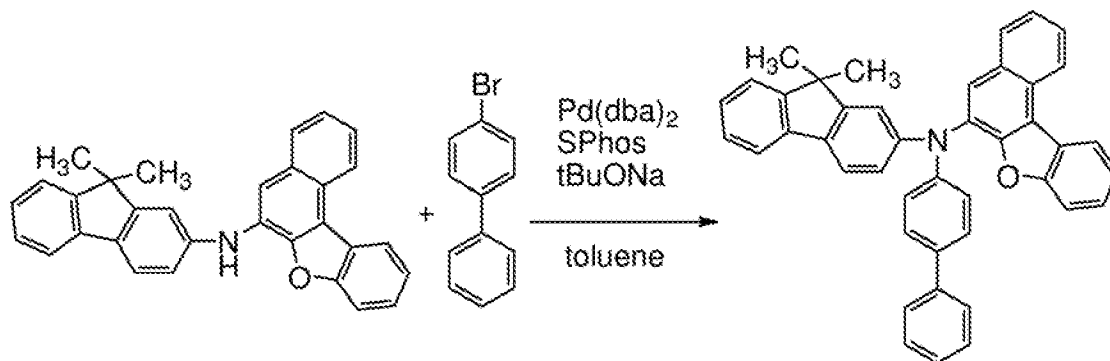
m o l) の *t*-ブトキシナトリウムを、還流管を付けた 200 mL 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に 25 mL のキシレンを加え、減圧脱気を行った後、フラスコ内を窒素気流下にした。この混合物を 80℃ で攪拌し、同温度でフラスコ内に 62 mg (0.11 mmol) のビス (ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム) (0) を加えた後、110℃ で 5 時間攪拌した。攪拌後、得られた混合物に 600 mL のトルエンを加えて 100℃ で加熱攪拌をした。この混合物を同温度で、アルミナ、フロリジル (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 066-05265)、セライト (和光純薬工業株式会社、カタログ番号: 537-02305) を通してろ過した。得られたろ液を濃縮して得た固体を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン: トルエン = 1:1) で精製した後、高速液体クロマトグラフィー (展開溶媒: クロロホルム) により精製したところ、目的物の淡黄色固体を 0.96 g、収率 66% で得た。

[0352]

得られた淡黄色固体 0.96 g をトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、アルゴンを 15 mL/min で流しながら、圧力 2.5 Pa、270℃ で淡黄色固体を 16 時間加熱して行った。昇華精製後に目的物の白色固体を 0.80 g、回収率 84% で得た。ステップ 2 の合成スキームを以下に示す。

[0353]

[化 57]



[0354]

得られた固体の $^1\text{H-NMR}$ の数値データを以下に示す。また、 $^1\text{H-NMR}$ チャートを図 23A および図 23B に示す。これにより、本合成例によって F B i B n f (6) が得られたことがわかった。

[0355]

$^1\text{H-NMR}$ (ジクロロメタン- d_2 , 300 MHz): δ = 8.63 (d, J = 8.0 Hz, 1H)、8.43 (dd, J_1 = 6.8 Hz, J_2 = 1.5 Hz, 1H)、7.86 (d, J = 8.0 Hz, 1H)、7.71 (s, 1H)、7.69–7.59 (m, 5H)、7.53 (d, J = 8.5 Hz, 2H)、7.52–7.38 (m, 7H)、7.32–7.24 (m, 4H)、7.21 (d, J = 9.0 Hz, 2H)、7.13 (dd, J_1 = 8.3 Hz, J_2 = 1.5 Hz, 1H) 1.37 (s, 6H)

[0356]

次に、F B i B n f (6) のトルエン溶液および固体薄膜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。測定方法および測定装置は、実施例 1 と同様であるため、繰り返しとなる記載を省略する。

[0357]

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図24に示す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図25に示す。図24の結果より、FBiBnf(6)のトルエン溶液では、389nm、352nm、340nm、313nm付近にショルダーピークを含む吸収ピークが見られ、438nm(励起波長360nm)に発光波長のピークが見られた。また、図25の結果より、FBiBnf(6)の固体薄膜では、396nm、358nm、341nm、316nm付近にショルダーピークを含む吸収ピークが見られ、452nm付近(励起波長365nm)に発光波長のピークが見られた。

[0358]

FBiBnf(6)のHOMO準位およびLUMO準位をサイクリックボルタンメトリ(CV)測定を元に算出した。算出方法を以下に示す。算出方法、測定方法および測定装置は、実施例1と同様であるため、繰り返しとなる記載を省略する。

[0359]

この結果、FBiBnf(6)のHOMO準位は -5.48 eV 、LUMO準位は -2.41 eV であることがわかった。また、酸化還元波の繰り返し測定において1サイクル目と100サイクル後の波形と比較したところ、Ea測定においては87%、Ec測定においては97%のピーク強度を保っていたことから、FBiBnf(6)は酸化及び還元に対する耐性が良好であることが確認された。

[0360]

また、FBiBnf(6)の示差走査熱量測定(DSC測定)を、パーキンエルマー社製、Pyris 1 DSCを用いて測定した。示差走査熱量測定は、昇温速度 $40^\circ\text{C}/\text{min}$ にて、 -10°C から 300°C まで昇温した後、同温度で1分間保持してから降温速度 $100^\circ\text{C}/\text{min}$ にて -10°C まで冷却する操作を2回連続で行った。2サイクル目のDSC測定結果から、FBiBnf(6)のガラス転移点は 128°C であることが明らかとなり、非常に高い耐熱性を有する物質であることが示された。

[0361]

また、FBiBnf(6)の示差熱分析(Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis)を行った。測定には高真空差動型示差熱天秤(ブルカー・エイエックスエス株式会社製、TG-DTA2410SA)を用いた。測定は、大気圧において、昇温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 、窒素気流下(流速 $200\text{ mL}/\text{min}$)の条件で行った。熱重量測定-示差熱分析において、熱重量測定から求めた重量が測定開始時の5%となる温度(分解温度)は 352°C であることがわかり、良好な昇華性を有する物質であることが示された。

[0328]

以上の結果から、本発明の一態様の有機化合物は、高い耐熱性と良好な昇華性を併せ持ち、耐熱性の高い有機光デバイス(発光デバイス及び受光デバイス)を提供でき、また、デバイス作製の生産性を高くできることが確認された。

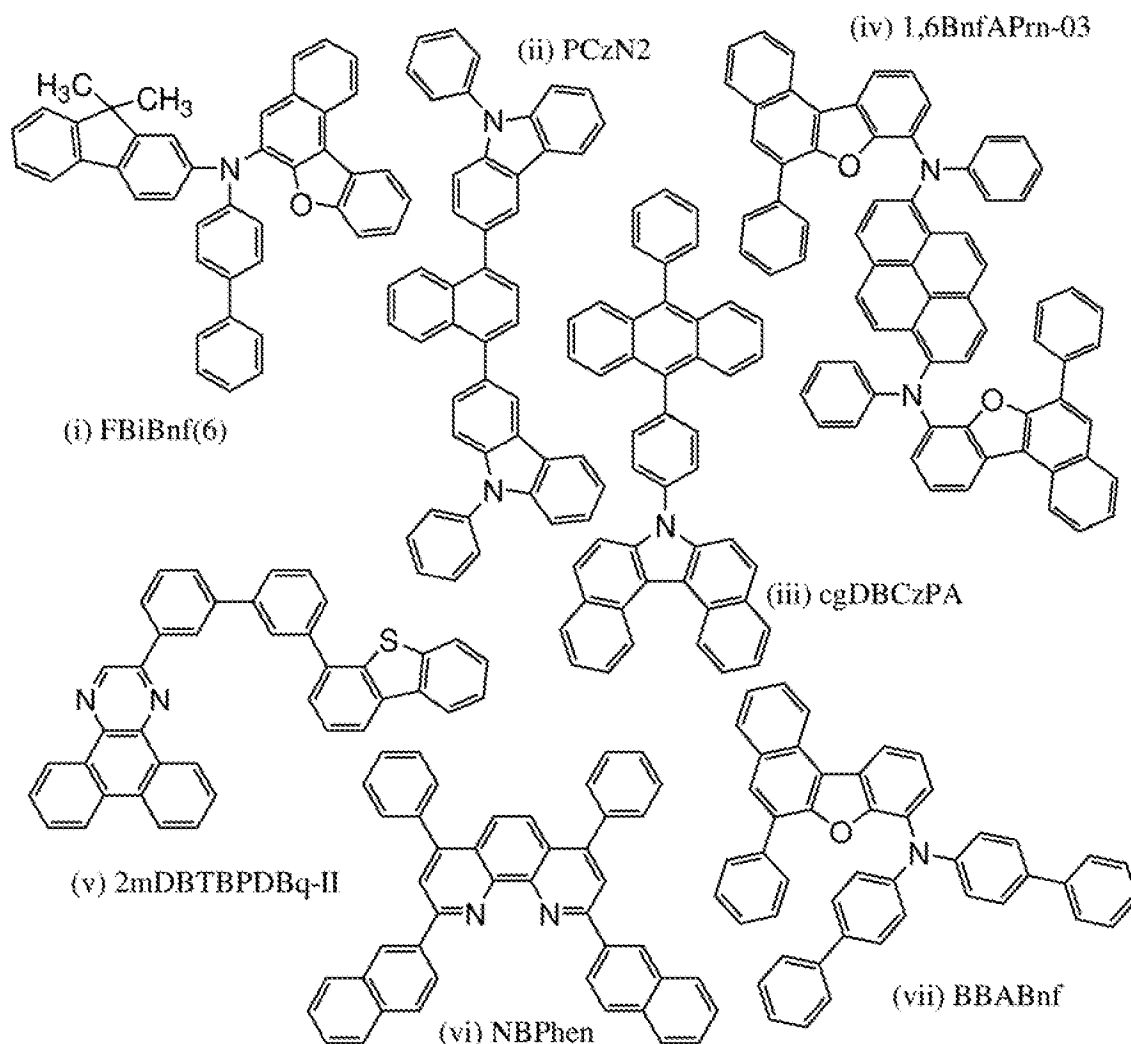
[実施例5]

[0362]

本実施例では、実施の形態で説明した本発明の一態様の発光デバイスについて説明する。本実施例で用いた有機化合物の構造式を以下に示す。

[0363]

[化58]



[0364]

(発光デバイス1の作製方法)

まず、ガラス基板上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第1の電極101を形成した。なお、その膜厚は70nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

[0365]

次に、基板上に発光デバイス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。

[0366]

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。

[0367]

次に、第1の電極101が形成された面が下方となるように、第1の電極101が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、第1の電極101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により上記構造式(i)で表されるN-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミン (略称: FBiBnf(6)) とALD-MP001Q (分析工房株式会社、材料シリアル番号: 1S2

0180314)とを、重量比で1:0.1(=FBiBnf(6):ALD-MP001Q)となるように10nm共蒸着して正孔注入層111を形成した。

[0368]

次に、正孔注入層111上に、FBiBnf(6)を膜厚20nmとなるように蒸着した後、上記構造式(i i)で表される3, 3'-(ナフタレン-1, 4-ジイル)ビス(9-フェニル-9H-カルバゾール)(略称:PCzN2)を10nmとなるように蒸着して正孔輸送層112を形成した。

[0369]

続いて、上記構造式(i i i)で表される7-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-7H-ジベンゾ[c, g]カルバゾール(略称:c gDBCzPA)と、上記構造式(i v)で表されるN, N'-(ピレン-1, 6-ジイル)ビス[(6, N-ジフェニルベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン)-8-アミン](略称:1, 6BnfAPrn-03)とを、重量比で1:0.03(=c gDBCzPA:1, 6BnfAPrn-03)となるように25nm共蒸着して発光層113を形成した。

[0370]

その後、発光層113上に、上記構造式(v)で表される2-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル-3-イル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称:2mDBTBPD Bq-I1)を15nm形成し、さらに上記構造式(v i)で表される2, 9-ジ(2-ナフチル)-4, 7-ジフェニル-1, 10-フェナントロリン(略称:NBPhen)を膜厚10nmとなるように蒸着し、電子輸送層114を形成した。

[0371]

電子輸送層114を形成した後、フッ化リチウム(LiF)を、1nm蒸着して電子注入層115を形成し、続いてアルミニウムを200nmの膜厚となるように蒸着することで第2の電極102を形成して本実施例の発光デバイス1を作製した。

[0372]

(比較発光デバイス1の作製方法)

比較発光デバイス1は、発光デバイス1におけるFBiBnf(6)を、上記構造式(v i i)で表されるN, N'-ビス(4-ビフェニル)-6-フェニルベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン-8-アミン(略称:BBABnf)に変えた他は発光デバイス1と同様に作製した。

[0373]

(発光デバイス2の作製方法)

発光デバイス2は、発光デバイス1の正孔輸送層におけるFBiBnf(6)の膜厚を20nmから120nmにした他は発光デバイス1と同様に作製した。

[0374]

(比較発光デバイス2の作製方法)

比較発光デバイス2は、発光デバイス2におけるFBiBnf(6)を、BBABnfに変えた他は発光デバイス2と同様に作製した。

[0375]

上記発光デバイスの素子構造を以下の表にまとめる。

[0376]

[表1]

	正孔 注入層	正孔 輸送層		発光層	電子 輸送層	
		1	2		1	2
		10nm	20nm		15nm	10nm
発光 デバイス1	FBiBnf(6): ALD-MP001Q (1:0.1)	FBiBnf(6)	PCzN2	cgDBCzPA: 1,6BnfAPrn-03 (1:0.03)	2mDBTBP DBq-II	NBPhen
比較 発光 デバイス1	BBABnf: ALD-MP001Q (1:0.1)	BBABnf				

[0377]

[表2]

	正孔 注入層	正孔 輸送層		発光層	電子 輸送層	
		1	2		1	2
		10nm	120nm		15nm	10nm
発光 デバイス2	FBiBnf(6): ALD-MP001Q (1:0.1)	FBiBnf(6)	PCzN2	cgDBCzPA: 1,6BnfAPrn-03 (1:0.03)	2mDBTBP DBq-II	NBPhen
比較 発光 デバイス2	BBABnf: ALD-MP001Q (1:0.1)	BBABnf				

[0378]

上記発光デバイスを、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光デバイスが大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時にUV処理、80℃にて1時間熱処理）を行った後、初期特性について測定を行った。

[0379]

発光デバイス1および比較発光デバイス1の輝度－電流密度特性を図26に、電流効率－輝度特性を図27に、輝度－電圧特性を図28に、電流－電圧特性を図29に、外部量子効率－輝度特性を図30に、発光スペクトルを図31に、発光デバイス2および比較発光デバイス2の輝度－電流密度特性を図32に、電流効率－輝度特性を図33に、輝度－電圧特性を図34に、電流－電圧特性を図35に、外部量子効率－輝度特性を図36に、発光スペクトルを図37に、示す。また、各発光デバイスの1000cd/m²付近における主要な特性を以下に示す。

[0380]

[表3]

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度 _x	色度 _y	電流効率 (cd/A)	外部量子 効率(%)
発光デバイス1	3.2	0.38	9.4	0.14	0.12	11.2	11.5
比較発光デバイス1	3.3	0.38	9.4	0.14	0.12	10.4	11.0

[0381]

[表4]

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度 _x	色度 _y	電流効率 (cd/A)	外部量子 効率(%)
発光デバイス2	3.5	0.58	14.5	0.14	0.09	7.4	9.2
比較発光デバイス2	4.4	0.56	14.1	0.14	0.09	7.1	8.7

[0382]

図26乃至図31より、本発明の一態様の発光デバイス1は、発光効率の良好なELデバイスであることがわかった。また、発光デバイス2および比較発光デバイス2は、正孔輸送層におけるFBiBnf(6)およびBBABnfを120nmと厚膜化した素子であるが、本発明の一態様の発光デバイス2は、厚膜化されても電圧上昇が小さい素子であることがわかる。このことから、本発明の一態様の有機化合物であるFBiBnf(6)は、キャリア輸送性、特に正孔輸送性が良好な有機化合物であることがわかる。

[0383]

また、電流密度50mA/cm²における駆動時間に対する輝度の変化を表すグラフを図38および図39に示した。図38および図39に示したように、本発明の一態様の発光デバイスである発光デバイス1および発光デバイス2は比較発光デバイス1および比較発光デバイス2と同様に寿命の良好な発光デバイスであることが分かった。

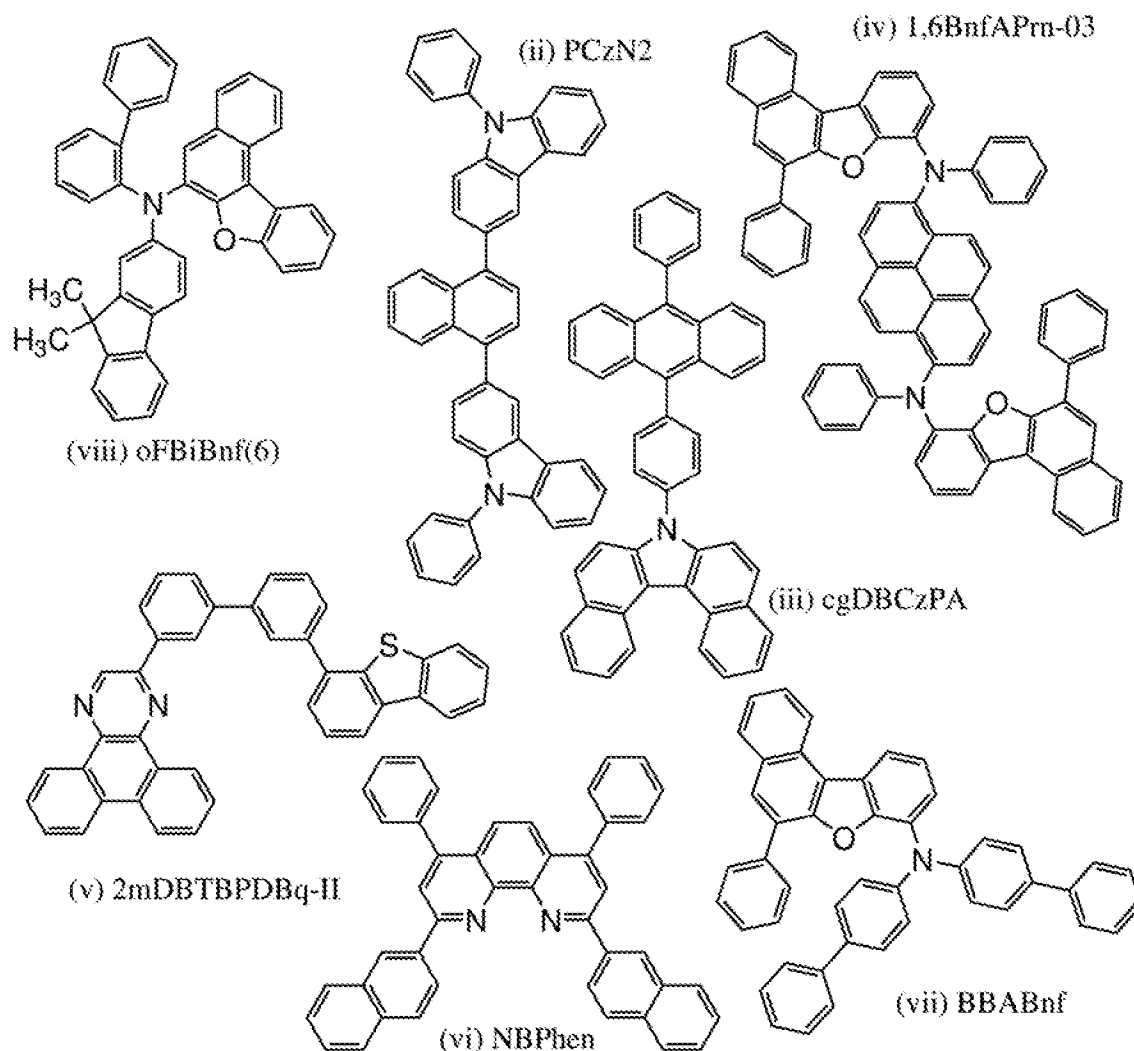
[実施例6]

[0384]

本実施例では、実施の形態で説明した本発明の一態様の発光デバイスについて説明する。本実施例で用いた有機化合物の構造式を以下に示す。

[0385]

[化59]



[0386]

(発光デバイス3の作製方法)

まず、ガラス基板上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第1の電極101を形成した。なお、その膜厚は70nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

[0387]

次に、基板上に発光デバイス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。

[0388]

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。

[0389]

次に、第1の電極101が形成された面が下方となるように、第1の電極101が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、第1の電極101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により上記構造式(viii)で表されるN-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-6-アミン(略称: oFBiBnf(6))とALD-MP001Q(分析工房株式会社、材料シリアル番号:

1 S 2 0 1 8 0 3 1 4) とを、重量比で 1 : 0. 1 (= o F B i B n f (6) : A L D - M P 0 0 1 Q) となるように 1 0 n m 共蒸着して正孔注入層 1 1 1 を形成した。

[0 3 9 0]

次に、正孔注入層 1 1 1 上に、o F B i B n f (6) を膜厚 2 0 n m となるように蒸着した後、上記構造式 (i i) で表される 3, 3' - (ナフタレン-1, 4-ジイル) ビス (9-フェニル-9H-カルバゾール) (略称: P C z N 2) を 1 0 n m となるように蒸着して正孔輸送層 1 1 2 を形成した。

[0 3 9 1]

続いて、上記構造式 (i i i) で表される 7- [4- (1 0-フェニル-9-アントリル) フェニル] -7H-ジベンゾ [c, g] カルバゾール (略称: c g D B C z P A) と、上記構造式 (i v) で表される N, N' - (ピレン-1, 6-ジイル) ビス [(6, N-ジフェニルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン) -8-アミン] (略称: 1, 6 B n f A P r n - 0 3) とを、重量比で 1 : 0. 0 3 (= c g D B C z P A : 1, 6 B n f A P r n - 0 3) となるように 2 5 n m 共蒸着して発光層 1 1 3 を形成した。

[0 3 9 2]

その後、発光層 1 1 3 上に、上記構造式 (v) で表される 2- [3' - (ジベンゾチオフェン-4-イル) ビフェニル-3-イル] ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 2 m D B T B P D B q - I 1) を 1 5 n m 形成し、さらに上記構造式 (v i) で表される 2, 9-ジ (2-ナフチル) -4, 7-ジフェニル-1, 1 0-フェナントロリン (略称: N B P h e n) を膜厚 1 0 n m となるように蒸着し、電子輸送層 1 1 4 を形成した。

[0 3 9 3]

電子輸送層 1 1 4 を形成した後、フッ化リチウム (L i F) を、1 n m 蒸着して電子注入層 1 1 5 を形成し、続いてアルミニウムを 2 0 0 n m の膜厚となるように蒸着することで第 2 の電極 1 0 2 を形成して本実施例の発光デバイス 3 を作製した。

[0 3 9 4]

(比較発光デバイス 3 の作製方法)

比較発光デバイス 3 は、発光デバイス 3 における o F B i B n f (6) を、上記構造式 (v i i) で表される N, N-ビス (4-ビフェニル) -6-フェニルベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン (略称: B B A B n f) に変えた他は発光デバイス 3 と同様に作製した。

[0 3 9 5]

(発光デバイス 4 の作製方法)

発光デバイス 4 は、発光デバイス 3 の正孔輸送層における o F B i B n f (6) の膜厚を 2 0 n m から 1 2 0 n m にした他は発光デバイス 3 と同様に作製した。

[0 3 9 6]

(比較発光デバイス 4 の作製方法)

比較発光デバイス 4 は、発光デバイス 4 における o F B i B n f (6) を、B B A B n f に変えた他は発光デバイス 4 と同様に作製した。

[0 3 9 7]

上記発光デバイスの素子構造を以下の表にまとめる。

[0 3 9 8]

[表 5]

	正孔 注入層	正孔 輸送層		発光層	電子 輸送層	
		1	2		1	2
		10nm	20nm		15nm	10nm
発光 デバイス3	oFBiBnf(6): ALD-MP001Q (1:0.1)	oFBiBnf(6)	PCzN2	cgDBCzPA: 1,6BnfAPrn-03 (1:0.03)	2mDBTBP DBq-II	NBPhen
比較 発光 デバイス3	BBABnf: ALD-MP001Q (1:0.1)	BBABnf				

[0399]

[表6]

	正孔 注入層	正孔 輸送層		発光層	電子 輸送層	
		1	2		1	2
		10nm	120nm		15nm	10nm
発光 デバイス4	oFBiBnf(6): ALD-MP001Q (1:0.1)	oFBiBnf(6)	PCzN2	cgDBCzPA: 1,6BnfAPrn-03 (1:0.03)	2mDBTBP DBq-II	NBPhen
比較 発光 デバイス4	BBABnf: ALD-MP001Q (1:0.1)	BBABnf				

[0400]

上記発光デバイスを、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光デバイスが大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時にUV処理、80℃にて1時間熱処理）を行った後、初期特性について測定を行った。

[0401]

発光デバイス3および比較発光デバイス3の輝度－電流密度特性を図40に、電流効率－輝度特性を図41に、輝度－電圧特性を図42に、電流－電圧特性を図43に、外部量子効率－輝度特性を図44に、発光スペクトルを図45に、発光デバイス4および比較発光デバイス4の輝度－電流密度特性を図46に、電流効率－輝度特性を図47に、輝度－電圧特性を図48に、電流－電圧特性を図49に、外部量子効率－輝度特性を図50に、発光スペクトルを図51に、示す。また、各発光デバイスの1000 cd/m²付近における主要な特性を以下に示す。

[0402]

[表7]

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度x	色度y	電流効率 (cd/A)	外部量子 効率(%)
発光デバイス3	3.2	0.41	10.2	0.14	0.12	11.1	11.3
比較発光デバイス3	3.2	0.35	8.8	0.14	0.11	10.2	10.9

[0403]

[表8]

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度 _x	色度 _y	電流効率 (cd/A)	外部量子 効率(%)
発光デバイス4	3.7	0.54	13.4	0.14	0.09	7.4	9.2
比較発光デバイス4	4.2	0.65	16.2	0.14	0.09	6.8	8.3

[0404]

図40乃至図45より、本発明の一態様の発光デバイス3は、発光効率の良好なELデバイスであることがわかった。また、図48、図49より、発光デバイス4および比較発光デバイス4は、正孔輸送層におけるoFBiBnf(6)およびBBABnfを120nmと厚膜化した素子であるが、本発明の一態様の発光デバイス4は、厚膜化されても電圧上昇が小さい素子であることがわかる。このことから、本発明の一態様の有機化合物であるoFBiBnf(6)は、キャリア輸送性、特に正孔輸送性が良好な有機化合物であることがわかる。

[0405]

また、電流密度50mA/cm²における駆動時間に対する輝度の変化を表すグラフを図52および図53に示した。図52および図53に示したように、本発明の一態様の発光デバイスである発光デバイス3および発光デバイス4は比較発光デバイス3および比較発光デバイス4と同様に寿命の良好な発光デバイスであることが分かった。

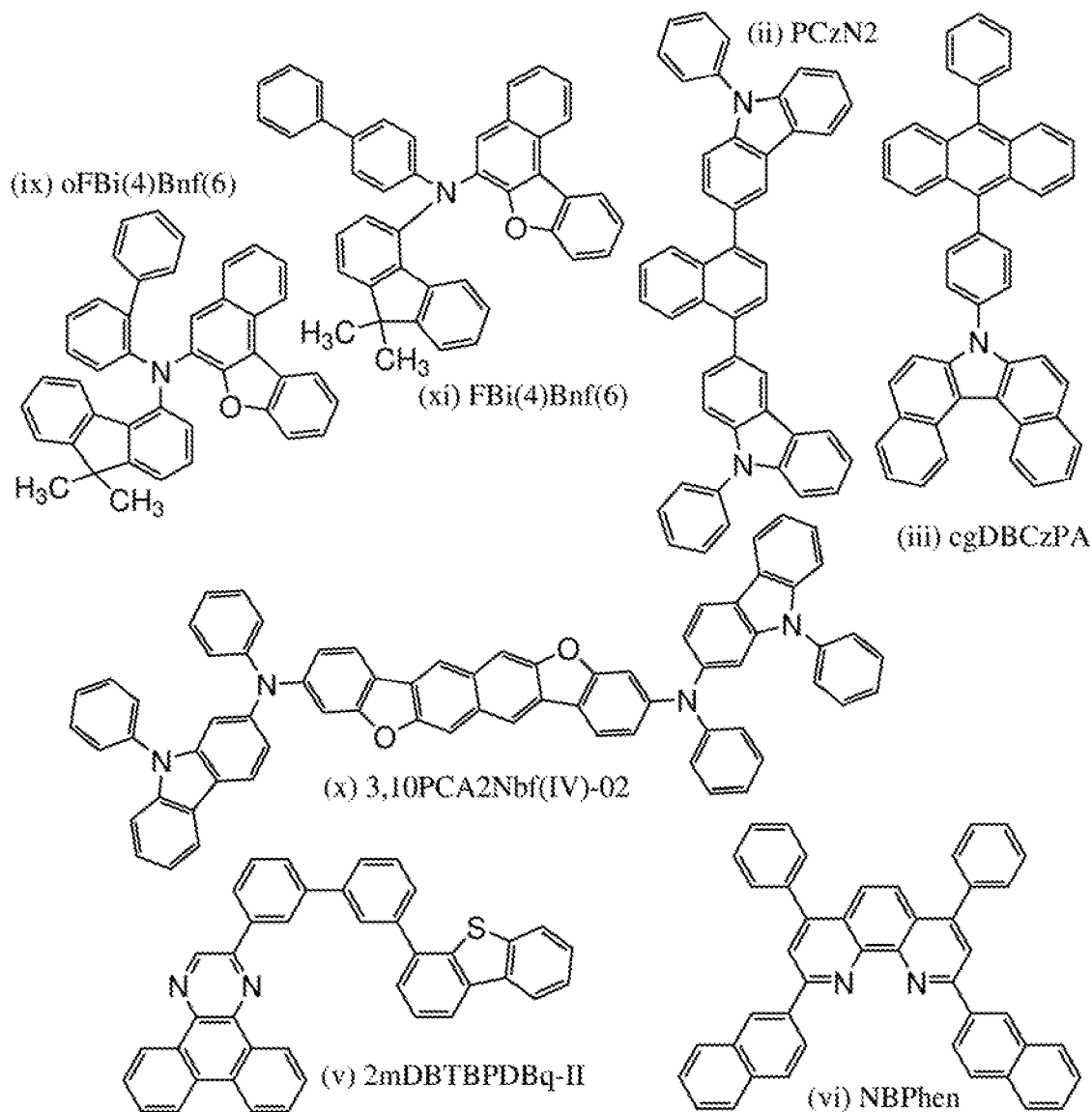
[実施例7]

[0406]

本実施例では、実施の形態で説明した本発明の一態様の発光デバイスについて説明する。本実施例で用いた有機化合物の構造式を以下に示す。

[0407]

[化60]



[0408]

(発光デバイス5の作製方法)

まず、ガラス基板上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第1の電極101を形成した。なお、その膜厚は70nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

[0409]

次に、基板上に発光デバイス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。

[0410]

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。

[0411]

次に、第1の電極101が形成された面が下方となるように、第1の電極101が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、第1の電極101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により上記構造式 (ix) で表されるN-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-

ジメチル-9H-フルオレン-4-イル) ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-6-アミン (略称: o F B i (4) B n f (6)) と A L D-M P 0 0 1 Q (分析工房株式会社、材料シリアル番号: 1 S 2 0 1 8 0 3 1 4) とを、重量比で 1 : 0. 1 (= o F B i (4) B n f (6) : A L D-M P 0 0 1 Q) となるように 1 0 n m 共蒸着して正孔注入層 1 1 1 を形成した。

[0 4 1 2]

次に、正孔注入層 1 1 1 上に、o F B i (4) B n f (6) を膜厚 2 0 n m となるように蒸着した後、上記構造式 (i i) で表される 3, 3' - (ナフトレン-1, 4-ジイル) ビス (9-フェニル-9H-カルバゾール) (略称: P C z N 2) を 1 0 n m となるように蒸着して正孔輸送層 1 1 2 を形成した。

[0 4 1 3]

続いて、上記構造式 (i i i) で表される 7-[4-(10-フェニル-9-アントリル) フェニル]-7H-ジベンゾ [c, g] カルバゾール (略称: c g D B C z P A) と、上記構造式 (x) で表される 3, 10-ビス [N-(9-フェニル-9H-カルバゾール-2-イル)-N-フェニルアミノ] ナフト [2, 3-b ; 6, 7-b'] ビスベンゾフラン (略称: 3, 1 0 P C A 2 N b f (I V) - 0 2) とを、重量比で 1 : 0. 0 1 5 (= c g D B C z P A : 3, 1 0 P C A 2 N b f (I V) - 0 2) となるように 2 5 n m 共蒸着して発光層 1 1 3 を形成した。

[0 4 1 4]

その後、発光層 1 1 3 上に、上記構造式 (v) で表される 2-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル) ビフェニル-3-イル] ジベンゾ [f, h] キノキサリン (略称: 2 m D B T B P D B q - I I) を 1 5 n m 形成し、さらに上記構造式 (v i) で表される 2, 9-ジ (2-ナフチル) -4, 7-ジフェニル-1, 10-フェナントロリン (略称: N B P h e n) を膜厚 1 0 n m となるように蒸着し、電子輸送層 1 1 4 を形成した。

[0 4 1 5]

電子輸送層 1 1 4 を形成した後、フッ化リチウム (L i F) を、1 n m 蒸着して電子注入層 1 1 5 を形成し、続いてアルミニウムを 2 0 0 n m の膜厚となるように蒸着することで第 2 の電極 1 0 2 を形成して本実施例の発光デバイス 5 を作製した。

[0 4 1 6]

(発光デバイス 6 の作製方法)

発光デバイス 6 は、発光デバイス 5 における o F B i (4) B n f (6) を、上記構造式 (x i) で表される N-(1, 1'-ビフェニル-4-イル)-N-(9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル) ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-6-アミン (略称: F B i (4) B n f (6)) に変えた他は発光デバイス 5 と同様に作製した。

[0 4 1 7]

上記発光デバイスの素子構造を以下の表にまとめる。

[0 4 1 8]

[表 9]

	正孔 注入層	正孔 輸送層		発光層	電子 輸送層	
		1	2		1	2
		10nm	20nm		10nm	25nm
発光 デバイス5	oFBi(4)Bnf(6): ALD-MP001Q (1:0.1)	oFBi(4)Bnf(6)	PCzN2	cgDBCzPA: 3,10PCA2Nbr(IV)-02 (1:0.015)	2mDBTBP DBq-II	NBPhen
発光 デバイス6	FBi(4)Bnf(6): ALD-MP001Q (1:0.1)	FBi(4)Bnf(6)				

[0419]

上記発光デバイスを、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光デバイスが大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時にUV処理、80℃にて1時間熱処理）を行った後、初期特性について測定を行った。

[0420]

発光デバイス5および発光デバイス6の輝度－電流密度特性を図54に、電流効率－輝度特性を図55に、輝度－電圧特性を図56に、電流－電圧特性を図57に、外部量子効率－輝度特性を図58に、発光スペクトルを図59に、示す。また、各発光デバイスの1000cd/m²付近における主要な特性を以下に示す。

[0421]

[表10]

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度x	色度y	電流効率 (cd/A)	外部量子 効率(%)
発光デバイス5	3.3	0.30	7.5	0.14	0.11	12.9	13.8
発光デバイス6	3.2	0.28	7.0	0.14	0.11	12.4	13.3

[0422]

図54乃至図59より、本発明の一態様の発光デバイス5および発光デバイス6は、発光効率の良好なELデバイスであることがわかった。

[実施例8]

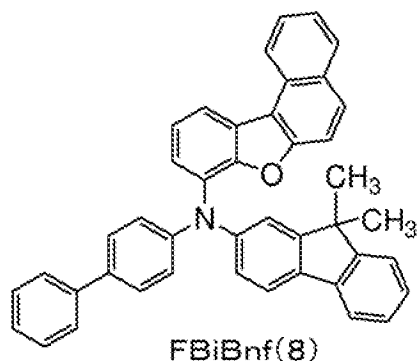
[0423]

《合成例5》

本合成例では、実施の形態1で構造式(5-55)として示したN-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミン（略称：FBIBnf(8)）の合成方法について説明する。FBIBnf(8)の構造式を以下に示す。

[0424]

[化61]



[0425]

<ステップ1：FBiBnf(8)の合成>

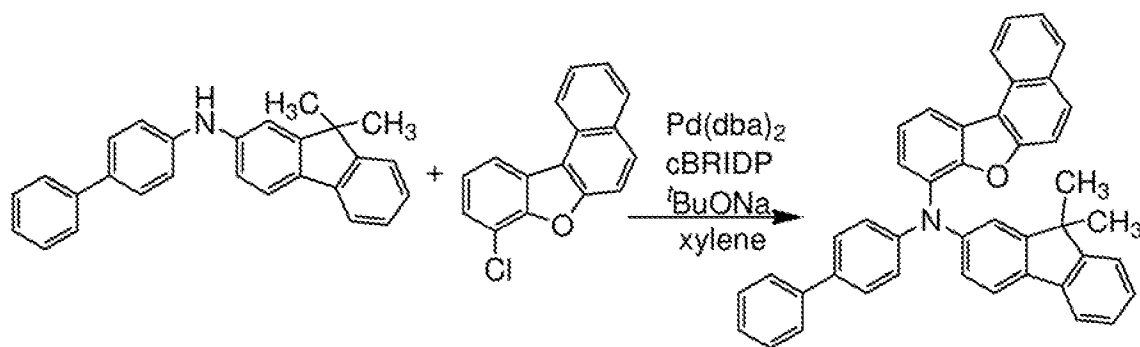
1. 6 g (6.3 mmol) の8-クロロベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フランと、2.3 g (6.3 mmol) の2-(4-ビフェニル)アミノ-9,9-ジメチルフルオレンと、1.2 g (13 mmol) のナトリウム tert-ブトキシドと、44 mg (0.13 mmol) のジ-tert-ブチル(1-メチル-2,2-ジフェニルシクロプロピル)ホスフィン(通称：cBRIDP(reg R))と、30 mLのキシレンを、還流管を付けた500 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に36 mg (63 μmol)のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加え、この混合物を160℃で6時間加熱した。

[0426]

得られた混合物にトルエンと水を加え、有機層と水層を分離させた。得られた有機層を水で2回洗浄し、続いて飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然ろ過し、硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮し、乾燥させたところ、黒褐色固体を4.3 g得た。得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィー(ヘキサン：トルエン=3：1)で精製し、白色固体を2.2 g、収率60%で得た。ステップ1の合成スキームを下に示す。

[0427]

[化62]



[0428]

得られた白色固体2.0 gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、アルゴンを10 mL/minで流しながら、圧力5.6 Pa、260℃で固体を16時間加熱して行った。昇華精製後に目的物の白色固体を1.6 g、回収率80%で得た。

[0429]

得られた固体の¹H-NMRの数値データを以下に示す。また、¹H-NMRチャートを図60に示す。なお、図60Bは図60Aにおける7.0 ppmから9.0 ppmの範囲を拡大して示したグラ

フである。これにより、F B i B n f (8) が得られたことがわかった。

[0430]

^1H NMR (クロロホルム- d , 300 MHz): δ = 8.65 (d, J = 8.7 Hz, 1H)、8.23 (d, J = 6.9 Hz, 1H)、8.00 (d, J = 8.1 Hz, 1H)、7.84 (d, J = 9.3 Hz, 1H)、7.74 (t, J = 8.4 Hz, 1H)、7.65 (d, J = 6.9 Hz, 1H)、7.63–7.28 (m, 16H)、7.21 (d, J = 8.7 Hz, 2H)、7.14 (dd, J = 4.2, 2.1 Hz, 1H)、1.39 (s, 6H)

[0431]

次に、F B i B n f (8) のトルエン溶液および固体薄膜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。固体薄膜は石英基板上に真空蒸着法にて作製した。

[0432]

吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計 (溶液: 日本分光株式会社製、V-550、薄膜: (株) 日立ハイテクノロジーズ製、U-4100) を用いた。なお溶液の吸収スペクトルは、石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いて算出し、薄膜の吸収スペクトルは、基板を含めた透過率と反射率から求めた吸光度 ($-\log_{10} [\%T / (100 - \%R)]$) より算出した。なお%Tは透過率、%Rは反射率を表す。また、発光スペクトルの測定には、蛍光光度計 (日本分光 FP-8600) を用いた。

[0433]

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図61に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図62に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。図61の結果より、F B i B n f (8) のトルエン溶液では、357 nm、339 nm付近に吸収ピークが見られ、421 nm付近 (励起波長 350 nm) に発光波長のピークが見られた。また、図62の結果より、F B i B n f (8) の固体薄膜では、360 nm、341 nm、315 nm、250 nm付近に吸収ピークが見られ、431 nm付近 (励起波長 340 nm) に発光波長のピークが見られた。

[0434]

F B i B n f (8) のHOMO準位およびLUMO準位をサイクリックボルタンメトリ (CV) 測定を元に算出した。算出方法、測定方法および測定装置は、実施例1と同様であるため、繰り返しとなる記載を省略する。

[0435]

この結果、F B i B n f (8) の酸化電位 E_a [V] の測定において、HOMO準位は-5.48 eVであることがわかった。一方、還元電位 E_c [V] の測定において、LUMO準位は-2.37 eVであることがわかった。また、酸化-還元波の繰り返し測定において1サイクル目と100サイクル後の波形と比較したところ、 E_a 測定においては85%、 E_c 測定においては94%のピーク強度を保っていたことから、F B i B n f (8) は酸化及び還元に対する耐性が非常に良好であることが確認された。

[0436]

また、F B i B n f (8) の示差走査熱量測定 (DSC測定) を、株式会社リガク製、DSC8231-SLを用いて測定した。示差走査熱量測定は、昇温速度 10 °C/min にて、0 °C から 290 °C

まで昇温した後、同温度で1分間保持してから降温速度 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ にて 0°C まで冷却する操作を3回連続で行った。2サイクル目のDSC測定結果から、FBiBnf(8)のガラス転移点は 118°C であることが明らかとなり、非常に高い耐熱性を有する物質であることが示された。

[0437]

また、FBiBnf(8)の示差熱分析(Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis)を行った。測定には高真空差動型示差熱天秤(ブルカー・エイエックスエス株式会社製、TG-DTA2410SA)を用いた。測定は、大気圧において、昇温速度 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、窒素気流下(流速 $200\text{mL}/\text{min}$)の条件で行った。熱重量測定-示差熱分析において、熱重量測定から求めた重量が測定開始時の 5% となる温度(分解温度)は 422°C であることがわかり、良好な昇華性を有する物質であることが示された。

[実施例9]

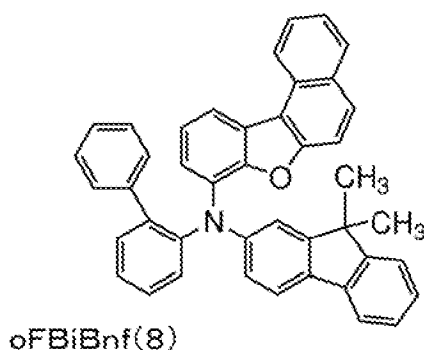
[0438]

《合成例6》

本合成例では、実施の形態1で構造式(5-3)として示したN-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミン(略称: oFBiBnf(8))の合成方法について説明する。oFBiBnf(8)の構造式を以下に示す。

[0439]

[化63]



[0440]

＜ステップ1: N-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミン(略称: oFBiBnf(8))の合成＞

1. 6g (6.3mmol)の8-クロロベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フランと、 2.3g (6.3mmol)の2-(2-ビフェニル)アミノ-9,9-ジメチルフルオレンと、 1.2g (13mmol)のナトリウム tert-ブトキシドと、 44mg (0.13mmol)のジ tert-ブチル(1-メチル-2,2-ジフェニルシクロプロピル)ホスフィン(通称: cBRIDP(regR))と、 30mL のキシレンを、還流管を付けた 500mL 三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に 36mg ($63\mu\text{mol}$)のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加え、この混合物を 160°C で12時間加熱した。

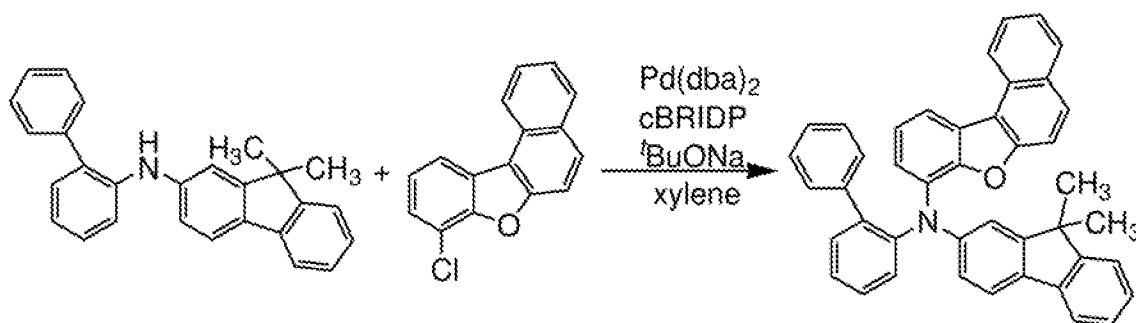
[0441]

得られた混合物にトルエンと水を加え、有機層と水層を分離させた。得られた有機層水で2回洗浄し、

続いて飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然ろ過し、硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮し、乾燥させたところ、黒褐色固体を4.1 g得た。得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィー（ヘキサン：トルエン＝4：1）で精製し、白色固体を1.2 g、収率33%で得た。本合成例の合成スキームを下に示す。

[0442]

[化64]



[0443]

得られた1.2 gの白色固体をトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、アルゴンを15 mL/minで流しながら、圧力4.0 Pa、225℃で固体を16時間加熱して行った。昇華精製後に目的物の白色固体を1.1 g、回収率92%で得た。

[0444]

得られた固体の¹H-NMRの数値データを以下に示す。また、¹H-NMRチャートを図63に示す。なお、図63Bは図63Aにおける6.6 ppmから9.0 ppmの範囲を拡大して示したグラフである。これにより、oFBiBnf (8) が得られたことがわかった。

[0445]

¹H NMR (クロロホルム-d, 300 MHz): δ = 8.57 (d, J = 7.8 Hz, 1H)、8.00–7.96 (m, 2H)、7.80 (d, J = 8.7 Hz, 1H)、7.70 (t, J = 6.6 Hz, 1H)、7.59 (d, J = 6.6 Hz, 1H)、7.53 (t, J = 7.5 Hz, 1H)、7.49–7.18 (m, 12H)、7.01 (d, J = 7.2 Hz, 1H)、6.94–6.79 (m, 4H)、6.75 (t, J = 7.2 Hz, 1H)、1.25 (s, 6H)

[0446]

次に、oFBiBnf (8) のトルエン溶液および固体薄膜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。測定方法および装置は実施例7と同様であるため繰り返すこととなる記載を省略する。

[0447]

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図64に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図65に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

[0448]

図64の結果より、oFBiBnf (8) のトルエン溶液では、377 nm、357 nm、339 nm付近に吸収ピークが見られ、414 nm付近（励起波長335 nm）に発光波長のピークが見られた。

[0449]

また、図65の結果より、oFBiBnf (8) の固体薄膜では、390 nm、385 nm、360 nm、340 nm付近に吸収ピークが見られ、423 nm付近 (励起波長340 nm) に発光波長のピークが見られた。

[0450]

oFBiBnf (8) のHOMO準位およびLUMO準位をサイクリックボルタンメトリ (CV) 測定を元に算出した。算出方法、測定方法および測定装置は、実施例1と同様であるため、繰り返しとなる記載を省略する。

[0451]

この結果、oFBiBnf (8) の酸化電位 E_a [V] の測定において、HOMO準位は -5.48 eVであることがわかった。一方、還元電位 E_c [V] の測定において、LUMO準位は -2.34 eVであることがわかった。また、酸化-還元波の繰り返し測定において1サイクル目と100サイクル後の波形と比較したところ、 E_a 測定においては92%、 E_c 測定においては94%のピーク強度を保っていたことから、oFBiBnf (8) は酸化及び還元に対する耐性が非常に良好であることが確認された。

[0452]

また、oFBiBnf (8) の示差走査熱量測定 (DSC測定) を、株式会社リガク製、DSC8231-SLを用いて測定した。示差走査熱量測定は、昇温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ にて、 0°C から 220°C まで昇温した後、同温度で1分間保持してから降温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ にて 0°C まで冷却する操作を3回連続で行った。2サイクル目のDSC測定結果から、oFBiBnf (8) のガラス転移点は 114°C であることが明らかとなり、非常に高い耐熱性を有する物質であることが示された。

[0453]

また、oFBiBnf (8) の示差熱分析 (Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis) を行なった。測定には高真空差動型示差熱天秤 (ブルカー・エイエクセス株式会社製、TG-DTA2410SA) を用いた。測定は、大気圧において、昇温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 、窒素気流下 (流速 $200\text{ mL}/\text{min}$) の条件で行った。熱重量測定-示差熱分析において、熱重量測定から求めた重量が測定開始時の5%となる温度 (分解温度) は 364°C であることがわかり、良好な昇華性を有する物質であることが示された。

[実施例10]

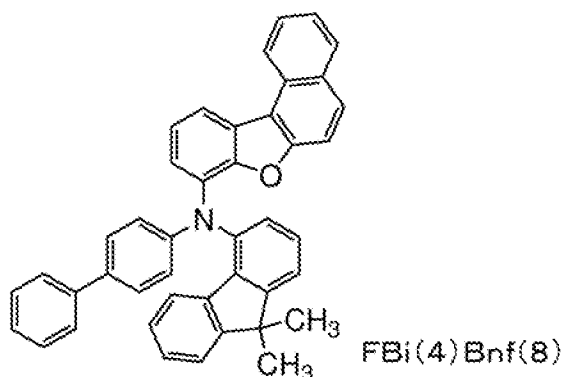
[0454]

《合成例7》

本合成例では、実施の形態1で構造式(5-32)として示したN-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミン (略称:FBi(4)Bnf(8)) の合成方法について説明する。FBi(4)Bnf(8) の構造式を以下に示す。

[0455]

[化65]



[0456]

<ステップ1：FBi(4)Bnf(8)の合成>

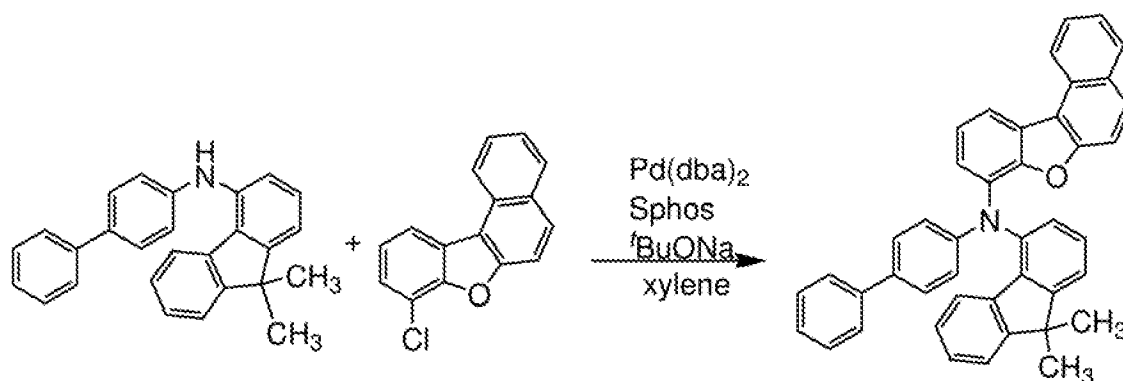
1. 5 g (5.8 mmol) の8-クロロベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フランと、2.0 g (5.8 mmol) の4-(4-ビフェニル)アミノ-9,9-ジメチルフルオレンと、1.1 g (12 mmol) のナトリウム *tert*-ブトキシドと、60 mg (0.15 mmol) の2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',6'-ジメトキシビフェニル (通称：Sphos) と、30 mL のキシレンを、還流管を付けた500 mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に33 mg (58 μ mol) のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加え、この混合物を160℃で7時間加熱した。

[0457]

得られた混合物にトルエンと水を加え、有機層と水層を分離させた。得られた有機層を水で2回洗浄し、続いて飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然ろ過し、硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮し、乾燥させたところ、黒褐色固体を3.6 g 得た。3.6 g の黒褐色固体を高速液体クロマトグラフィー (使用溶媒：クロロホルム) にて精製した。得られたフラクション溶液を濃縮し、得られた固体をヘキサンで洗浄した。得られた固体を乾燥させたところ、白色固体を1.7 g、収率51%で得た。本合成例の合成スキームを下に示す。

[0458]

[化66]



[0459]

得られた1.7 gの白色固体をトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、アルゴンを15 mL/minで流しながら、圧力3.8 Pa、245℃で固体を19時間加熱して行った。昇華精製後に目的物の白色固体を1.4 g、回収率82%で得た。

[0460]

得られた固体の ^1H -NMRの数値データを以下に示す。また、 ^1H -NMRチャートを図66に示す。なお、図66Bは図66Aにおける6.8 ppmから8.8 ppmの範囲を拡大して示したグラフである。これにより、F B i (4) B n f (8) が得られたことがわかった。

[0461]

^1H NMR (ジクロロメタン- d_2 , 300 MHz): δ = 8.64 (d, J = 8.1 Hz, 1H)、8.20 (dd, J = 3.9, 1.2 Hz, 1H)、8.04 (d, J = 7.5 Hz, 1H)、7.91 (d, J = 8.7 Hz, 1H)、7.80 (d, J = 7.5 Hz, 1H)、7.75 (t, J = 6.9 Hz, 1H)、7.63–7.52 (m, 4H)、7.50–7.32 (m, 8H)、7.31–7.16 (m, 4H)、7.02 (t, J = 7.5 Hz, 1H)、6.93 (d, J = 9.0 Hz, 2H)、1.50 (s, 6H)

[0462]

次に、F B i (4) B n f (8) のトルエン溶液および固体薄膜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。測定方法および測定装置に関しては実施例7と同じであるので繰り返すこととなる記載を省略する。

[0463]

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図67に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図68に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

[0464]

図67の結果より、F B i (4) B n f (8) のトルエン溶液では、331 nm、310 nm、298 nm付近に吸収ピークが見られ、404 nm付近（励起波長330 nm）に発光波長のピークが見られた。

[0465]

また、図68の結果より、F B i (4) B n f (8) の固体薄膜では、370 nm、335 nm、316 nm、302 nm付近に吸収ピークが見られ、414 nm付近（励起波長335 nm）に発光波長のピークが見られた。

[0466]

F B i (4) B n f (8) のHOMO準位およびLUMO準位をサイクリックボルタンメトリ(CV)測定を元に算出した。算出方法、測定方法および測定装置は、実施例1と同様であるため、繰り返すこととなる記載を省略する。

[0467]

この結果、F B i (4) B n f (8) の酸化電位 E_a [V] の測定において、HOMO準位は-5.58 eVであることがわかった。一方、還元電位 E_c [V] の測定において、LUMO準位は-2.37 eVであることがわかった。また、酸化-還元波の繰り返し測定において1サイクル目と100サイクル後の波形と比較したところ、 E_a 測定においては80%、 E_c 測定においては95%のピーク強度を保っていたことから、F B i (4) B n f (8) は酸化及び還元に対する耐性が非常に良好であることが確認された。

[0468]

また、F B i (4) B n f (8) の示差走査熱量測定(DSC測定)を、株式会社リガク製、DSC

8231-SLを用いて測定した。示差走査熱量測定は、昇温速度 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ にて、 0°C から 290°C まで昇温した後、同温度で1分間保持してから降温速度 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ にて 0°C まで冷却する操作を3回連続で行った。2サイクル目のDSC測定結果から、FBi(4)Bnf(8)のガラス転移点は 118°C であることが明らかとなり、非常に高い耐熱性を有する物質であることが示された。

[0469]

また、FBi(4)Bnf(8)の示差熱分析(Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis)を行った。測定には高真空差動型示差熱天秤(ブルカー・エイエックスエス株式会社製、TG-DTA2410SA)を用いた。測定は、大気圧において、昇温速度 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、窒素気流下(流速 $200\text{mL}/\text{min}$)の条件で行った。熱重量測定-示差熱分析において、熱重量測定から求めた重量が測定開始時の -5% となる温度(分解温度)は 394°C であることがわかり、良好な昇華性を有する物質であることが示された。

[実施例11]

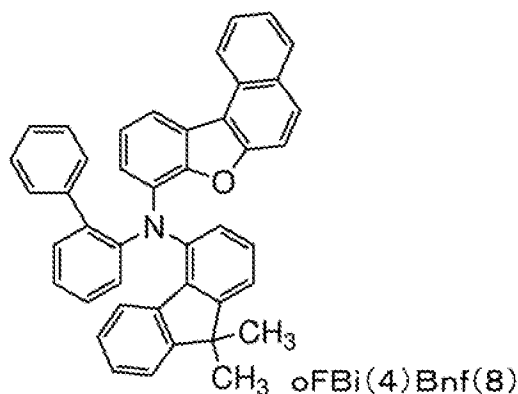
[0470]

《合成例8》

本合成例では、実施の形態で構造式(5-46)として示したN-(1,1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル)ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミン(略称: oFBi(4)Bnf(8))の合成方法について説明する。oFBi(4)Bnf(8)の構造式を以下に示す。

[0471]

[化67]



[0472]

＜ステップ1: oFBi(4)Bnf(8)の合成＞

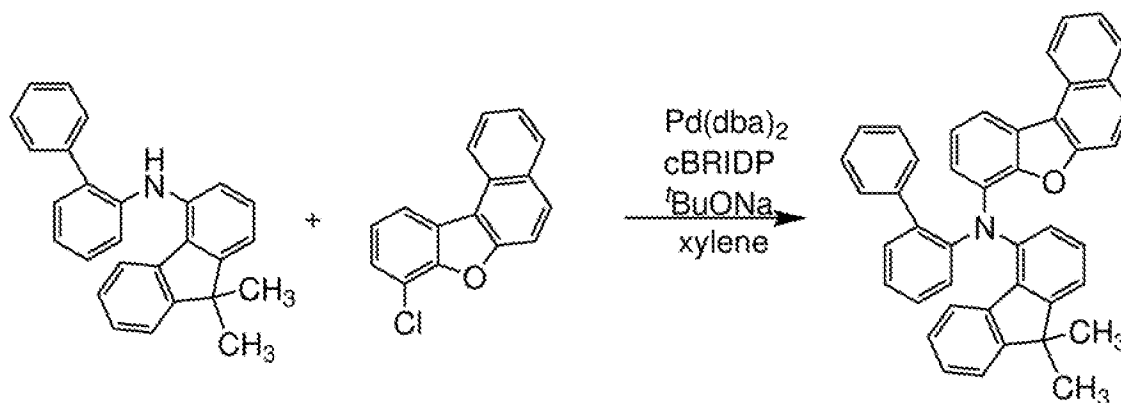
1. 6g(6.3mmol)の8-クロロベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フランと、2.3g(6.3mmol)の4-(2-ビフェニル)アミノ-9,9-ジメチルフルオレンと、1.2g(13mmol)のナトリウムtert-ブトキシドと、44mg(0.13mmol)のジ-tert-ブチル(1-メチル-2,2-ジフェニルシクロプロピル)ホスフィン(通称: cBRIDP(regR))と、30mLのキシレンを、還流管を付けた500mL三口フラスコに入れ、フラスコ内を窒素置換した。フラスコ内に36mg(63μmol)のビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を加え、この混合物を 160°C で10時間加熱した。

[0473]

得られた混合物にトルエンと水を加え、有機層と水層を分離させた。得られた有機層を水で2回洗浄し、続いて飽和食塩水で洗浄した。有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた混合物を自然ろ過し、硫酸マグネシウムを除去した。得られたろ液を濃縮し、乾燥させたところ、黒褐色固体を4.4 g 得た。得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィー（ヘキサン：トルエン＝3：1）で精製し、白色固体を1.8 g 得た。得られた1.8 g の固体を高速液体クロマトグラフィー（使用溶媒：クロロホルム）にて精製した。得られたフラクション溶液を濃縮し、得られた固体をヘキサンで洗浄した。得られた固体を乾燥させたところ、白色固体を1.1 g、収率30%で得た。また、得られた白色固体は、LC\MS分析の結果 m/z が578であり、目的物であることがわかった。本合成例の合成スキームを下に示す。

[0474]

[化68]



[0475]

得られた1.1 gの白色固体をトレインサブレーション法により昇華精製した。昇華精製は、アルゴンを10 mL/minで流しながら、圧力5.2 Pa、220℃で固体を16時間加熱して行った。昇華精製後に目的物の白色固体を0.78 g、回収率71%で得た。

[0476]

次に、oFBi(4)Bnf(8)のトルエン溶液および固体薄膜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。測定方法および測定装置に関しては実施例7と同じであるので繰り返しとなる記載を省略する。

[0477]

得られたトルエン溶液の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図69に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。また、固体薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの測定結果を図70に示す。横軸は波長、縦軸は吸収強度および発光強度を表す。

[0478]

図69の結果より、oFBi(4)Bnf(8)のトルエン溶液では、341 nm、327 nm、314 nm付近に吸収ピークが見られ、412 nm付近（励起波長330 nm）に発光波長のピークが見られた。また、図70の結果より、oFBi(4)Bnf(8)の固体薄膜では、342 nm、318 nm付近に吸収ピークが見られ、428 nm付近（励起波長340 nm）に発光波長のピークが見られた。

[0479]

oFBi(4)Bnf(8)のHOMO準位およびLUMO準位をサイクリックボルタンメトリ（C

V) 測定を元に算出した。算出方法、測定方法および測定装置は、実施例1と同様であるため、繰り返しとなる記載を省略する。

[0480]

この結果、o F B i (4) B n f (8) の酸化電位 E_a [V] の測定において、HOMO準位は -5.41 eV であることがわかった。一方、還元電位 E_c [V] の測定において、LUMO準位は -2.35 eV であることがわかった。また、酸化-還元波の繰り返し測定において1サイクル目と100サイクル後の波形と比較したところ、 E_a 測定においては85%、 E_c 測定においては88%のピーク強度を保っていたことから、o F B i (4) B n f (8) は酸化及び還元に対する耐性が非常に良好であることが確認された。

[0481]

また、o F B i (4) B n f (8) の示差走査熱量測定 (DSC測定) を、株式会社リガク製、DSC 8231-SLを用いて測定した。示差走査熱量測定は、昇温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ にて、 0°C から 250°C まで昇温した後、同温度で1分間保持してから降温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ にて 0°C まで冷却する操作を3回連続で行った。2サイクル目のDSC測定結果から、o F B i (4) B n f (8) のガラス転移点は 101°C であることが明らかとなり、非常に高い耐熱性を有する物質であることが示された。

[0482]

また、o F B i (4) B n f (8) の示差熱分析 (Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis) を行った。測定には高真空差動型示差熱天秤 (ブルカー・エイエックスエス株式会社製、TG-DTA 2410SA) を用いた。測定は、大気圧において、昇温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 、窒素気流下 (流速 $200\text{ mL}/\text{min}$) の条件で行った。熱重量測定-示差熱分析において、熱重量測定から求めた重量が測定開始時の5%となる温度 (分解温度) は 343°C であることがわかり、良好な昇華性を有する物質であることが示された。

[0328]

以上の結果から、本発明の一態様の有機化合物は、高い耐熱性と良好な昇華性を併せ持ち、耐熱性の高い有機光デバイス (発光デバイス及び受光デバイス) を提供でき、また、デバイス作製の生産性を高くできることが確認された。

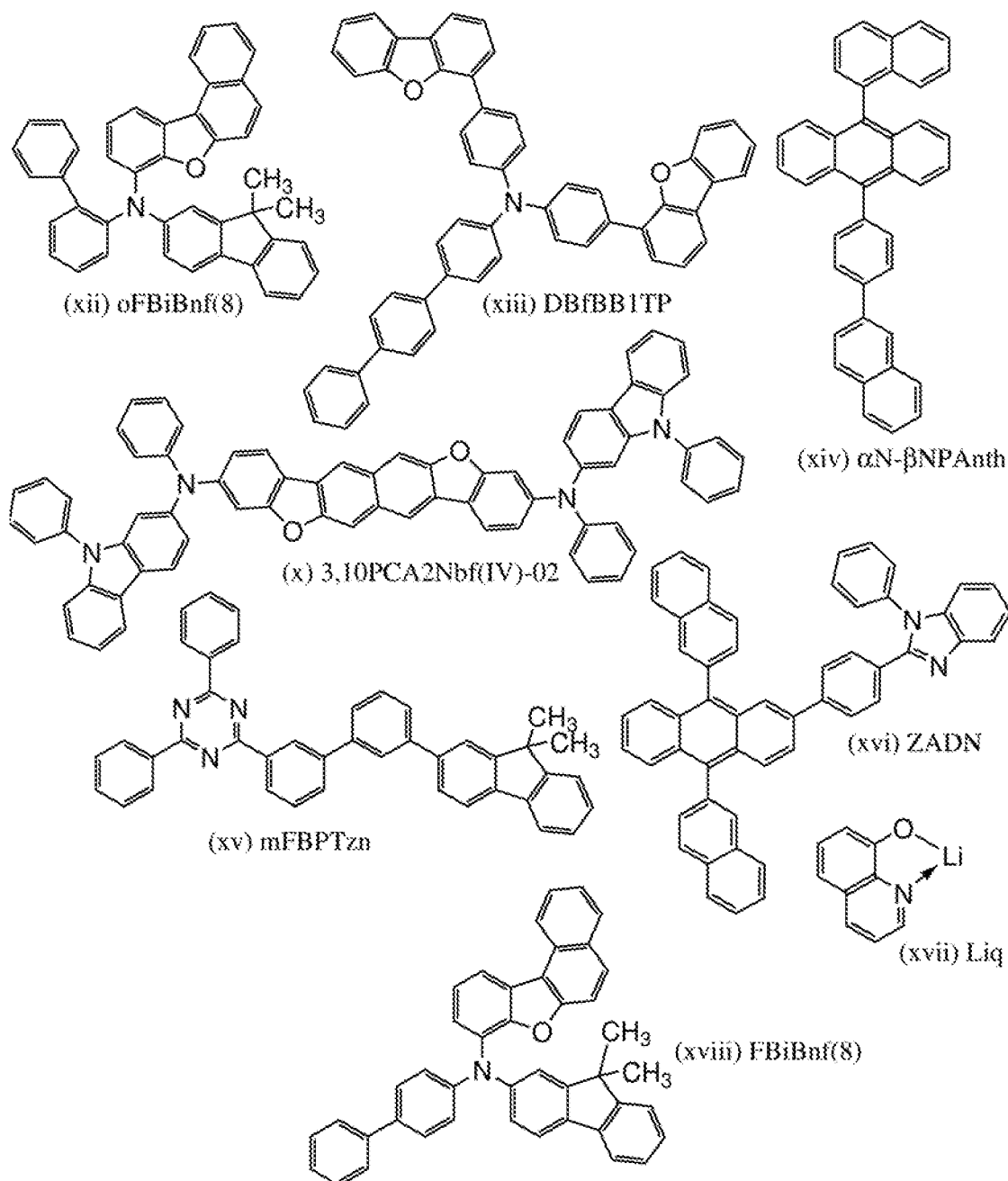
[実施例12]

[0483]

本実施例では、実施の形態で説明した本発明の一態様の発光デバイスについて説明する。本実施例で用いた有機化合物の構造式を以下に示す。

[0484]

[化69]



[0 4 8 5]

(発光デバイス7の作製方法)

まず、ガラス基板上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第1の電極101を形成した。なお、その膜厚は110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

[0 4 8 6]

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

[0 4 8 7]

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。

[0 4 8 8]

次に、第1の電極101が形成された面が下方となるように、第1の電極101が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、第1の電極101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により上記構造式(x i i)で表されるN-(1, 1'-ビフェニル-2-イル)-N-(9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-ベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン-8-アミン(略称: o F B i B n f (8))とALD-MP001Q(分析工房株式会社、材料シリアル番号: 1S20180314)とを、重量比で1:0.1(=o F B i B n f (8):ALD-MP001Q)となるように10nm共蒸着して正孔注入層111を形成した。

[0489]

次に、正孔注入層111上に、o F B i B n f (8)を膜厚20nmとなるように蒸着した後、上記構造式(x i i i)で表されるN,N-ビス[4-(ジベンゾフラン-4-イル)フェニル]-4-アミノ-p-ターフェニル(略称: D B f B B 1 T P)を10nmとなるように蒸着して正孔輸送層112を形成した。

[0490]

続いて、上記構造式(x i v)で表される9-(1-ナフチル)-10-[4-(2-ナフチル)フェニル]アントラセン(略称: α N- β N P A n t h)と、上記構造式(x)で表される3, 10-ビス[N-(9-フェニル-9H-カルバゾール-2-イル)-N-フェニルアミノ]ナフト[2, 3-b; 6, 7-b']ビスベンゾフラン(略称: 3, 10 P C A 2 N b f (I V)-02)とを、重量比で1:0.015(= α N- β N P A n t h:3, 10 P C A 2 N b f (I V)-02)となるように25nm共蒸着して発光層113を形成した。

[0491]

その後、発光層113上に、上記構造式(x v)で表される2-[3'-(9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-1, 1'-ビフェニル-3-イル]-4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン(略称: m F B P T z n)を10nm形成し、さらに上記構造式(x v i)で表される2-{4-[9, 10-ジ(ナフタレン-2-イル)-2-アントリル]フェニル}-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール(略称: Z A D N)と上記構造式(x v i i)で表される8-キノリノラトリウム(略称: L i q)とを、重量比で1:1、膜厚15nmとなるように共蒸着して電子輸送層114を形成した。

[0492]

電子輸送層114を形成した後、アルミニウムを膜厚200nmとなるように蒸着することで第2の電極102を形成して本実施例の発光デバイス7を作製した。

[0493]

(発光デバイス8の作製方法)

発光デバイス8は、発光デバイス7におけるo F B i B n f (8)を、上記構造式(x v i i)で表されるN-(1, 1'-ビフェニル-4-イル)-N-(9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-ベンゾ[b]ナフト[1, 2-d]フラン-8-アミン(略称: F B i B n f (8))に変えた他は発光デバイス7と同様に作製した。

[0494]

上記発光デバイスの素子構造を以下の表にまとめる。

[0495]

[表11]

	正孔 注入層	正孔 輸送層		発光層	電子 輸送層	
		1	2		1	2
		10nm	20nm		10nm	15nm
発光 デバイス7	oFBiBnf(8): ALD-MP001Q (1:0.1)	oFBiBnf(8)	DBfBB1TP	α N- β NPAnth: 3,10PCA2Nbf(IV)-02 (1:0.015)	mFBPTzn	ZADN: Liq (1:1)
発光 デバイス8	FBiBnf(8): ALD-MP001Q (1:0.1)	FBiBnf(8)				

[0496]

上記発光デバイスを、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光デバイスが大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時にUV処理、80℃にて1時間熱処理）を行った後、初期特性について測定を行った。

[0497]

発光デバイス7および発光デバイス8の輝度－電流密度特性を図71に、電流効率－輝度特性を図72に、輝度－電圧特性を図73に、電流－電圧特性を図74に、外部量子効率－輝度特性を図75に、発光スペクトルを図76に、示す。また、各発光デバイスの1000cd/m²付近における主要な特性を以下に示す。

[0498]

[表12]

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度x	色度y	電流効率 (cd/A)	外部量子 効率(%)
発光デバイス7	4.0	0.51	12.6	0.14	0.11	7.9	8.4
発光デバイス8	4.2	0.54	13.4	0.14	0.11	8.2	8.6

[0499]

図71乃至図76より、本発明の一態様の発光デバイス7および発光デバイス8は、発光効率の良好なELデバイスであることがわかった。

[0500]

また、電流密度50mA/cm²における駆動時間に対する輝度の変化を表すグラフを図77に示した。図77に示したように、本発明の一態様の発光デバイスである発光デバイス7および発光デバイス8はいずれも寿命の良好な発光デバイスであることがわかった。

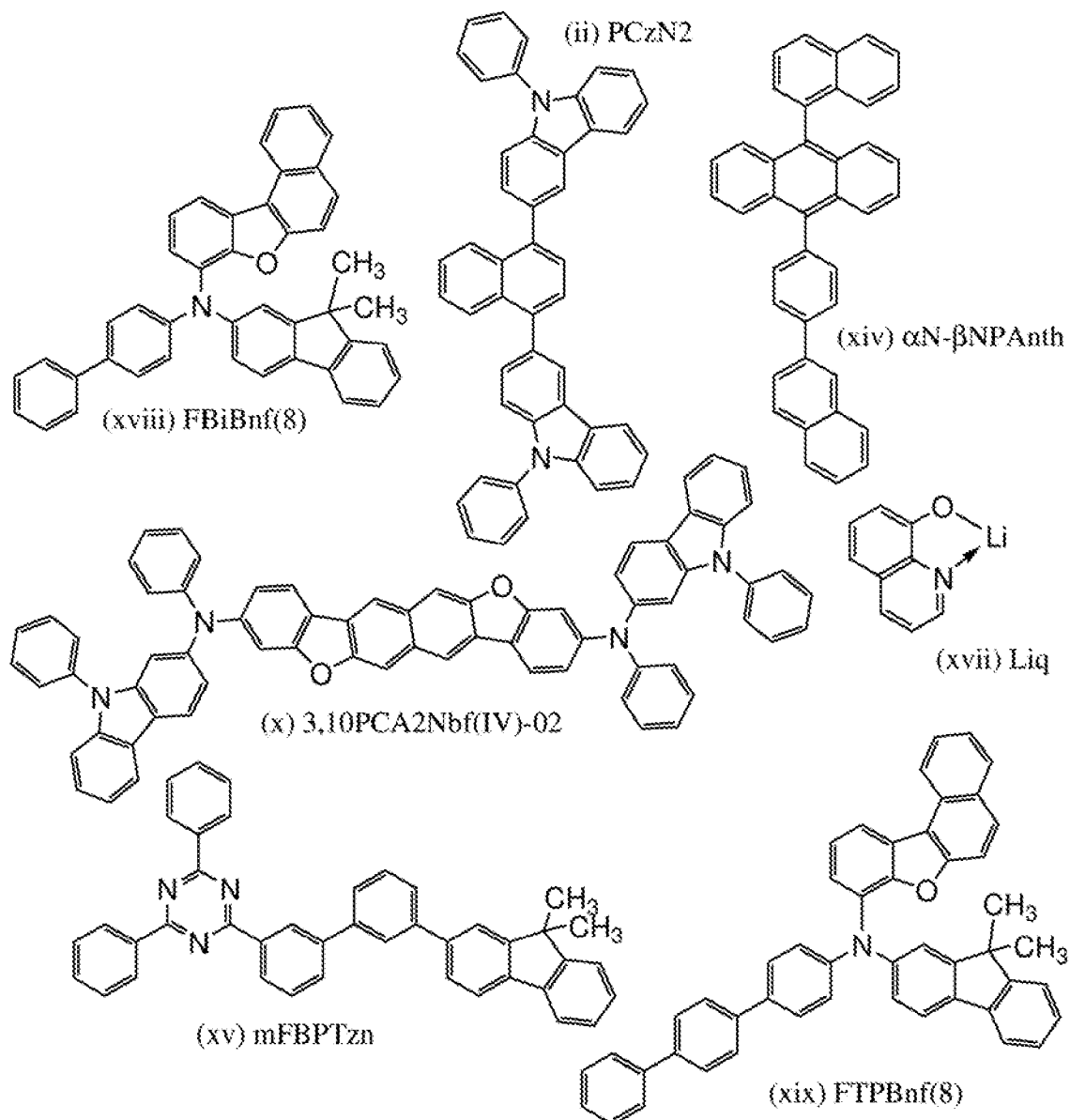
[実施例13]

[0501]

本実施例では、実施の形態で説明した本発明の一態様の発光デバイスについて説明する。本実施例で用いた有機化合物の構造式を以下に示す。

[0502]

[化70]



[0503]

(発光デバイス9の作製方法)

まず、ガラス基板上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第1の電極101を形成した。なお、その膜厚は110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

[0504]

次に、基板上に発光デバイス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。

[0505]

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。

[0506]

次に、第1の電極101が形成された面が下方となるように、第1の電極101が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、第1の電極101上に、抵抗加熱を用いた蒸着

法により上記構造式 (x v i i) で表される N- (1, 1'-ビフェニル-4-イル) -N- (9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル) -ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン (略称: F B i B n f (8)) と ALD-MP001Q (分析工房株式会社、材料シリアル番号: 1S20180314) とを、重量比で 1:0.1 (=F B i B n f (8):ALD-MP001Q) となるように 10nm 共蒸着して正孔注入層 111 を形成した。

[0507]

次に、正孔注入層 111 上に、F B i B n f (8) を膜厚 90nm となるように蒸着した後、上記構造式 (i i) で表される 3, 3'- (ナフタレン-1, 4-ジイル) ビス (9-フェニル-9H-カルバゾール) (略称: P C z N 2) を 10nm となるように蒸着して正孔輸送層 112 を形成した。

[0508]

続いて、上記構造式 (x i v) で表される 9- (1-ナフチル) -10- [4- (2-ナフチル) フェニル] アントラセン (略称: α N- β N P A n t h) と、上記構造式 (x) で表される 3, 10-ビス [N- (9-フェニル-9H-カルバゾール-2-イル) -N-フェニルアミノ] ナフト [2, 3-b; 6, 7-b'] ビスベンゾフラン (略称: 3, 10 P C A 2 N b f (I V) -02) とを、重量比で 1:0.015 (= α N- β N P A n t h : 3, 10 P C A 2 N b f (I V) -02) となるように 25nm 共蒸着して発光層 113 を形成した。

[0509]

その後、発光層 113 上に、上記構造式 (x v) で表される 2- [3'- (9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル) -1, 1'-ビフェニル-3-イル] -4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン (略称: m F B P T z n) を 10nm 形成し、さらに ALD-MC057Q (分析工房株式会社、材料シリアル番号: 1S20190330) と上記構造式 (x v i i) で表される 8-キノリノラトリチウム (略称: L i q) とを、重量比で 1:1、膜厚 15nm となるように共蒸着して電子輸送層 114 を形成した。

[0510]

電子輸送層 114 を形成した後、L i q を 1nm となるように蒸着して電子注入層 115 を形成し、アルミニウムを膜厚 200nm となるように蒸着することで第 2 の電極 102 を形成して本実施例の発光デバイス 9 を作製した。

[0511]

(比較発光デバイス 5 の作製方法)

比較発光デバイス 5 は、発光デバイス 9 における F B i B n f (8) を、上記構造式 (x i x) で表される N- (9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル) -N- (1, 1':4', 1''-ターフェニル-4-イル) -ベンゾ [b] ナフト [1, 2-d] フラン-8-アミン (略称: F T P B n f (8)) に変えた他は発光デバイス 9 と同様に作製した。

[0512]

上記発光デバイスの素子構造を以下の表にまとめる。

[0513]

[表 13]

	正孔 注入層	正孔 輸送層		発光層	電子 輸送層	
		1	2		1	2
		10nm	90nm	10nm	25nm	10nm
発光 デバイス9	FBiBnf(8): ALD-MP001Q (1:0.1)	FBiBnf(8)	PCzN2	α N- β NPAnt: 3,10PCA2Nbf(IV)-02 (1:0.015)	mFBPTzn	ALD-MC057C :Liq (1:1)
比較 発光 デバイス5	FTPBNf(8): ALD-MP001Q (1:0.1)	FTPBNf(8)				

[0514]

上記発光デバイスを、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光デバイスが大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時にUV処理、80℃にて1時間熱処理）を行った後、初期特性について測定を行った。

[0515]

発光デバイス9および比較発光デバイス5の輝度－電流密度特性を図78に、電流効率－輝度特性を図79に、輝度－電圧特性を図80に、電流－電圧特性を図81に、外部量子効率－輝度特性を図82に、発光スペクトルを図83に、示す。また、各発光デバイスの1000cd/m²付近における主要な特性を以下に示す。

[0516]

[表14]

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度 _x	色度 _y	電流効率 (cd/A)	外部量子 効率(%)
発光デバイス9	4.0	0.43	10.8	0.14	0.11	9.9	10.6
比較発光デバイス5	4.0	0.45	11.3	0.14	0.11	9.3	10.1

[0517]

図78乃至図83より、本発明の一態様の発光デバイス9は、発光効率の良好であり、また、低輝度領域においても良好な発光効率を示すELデバイスであることがわかった。

[0518]

また、電流密度50mA/cm²における駆動時間に対する輝度の変化を表すグラフを図84に示した。図84に示したように、発光デバイス9および比較発光デバイス5はいずれも寿命の良好な発光デバイスであることがわかった。

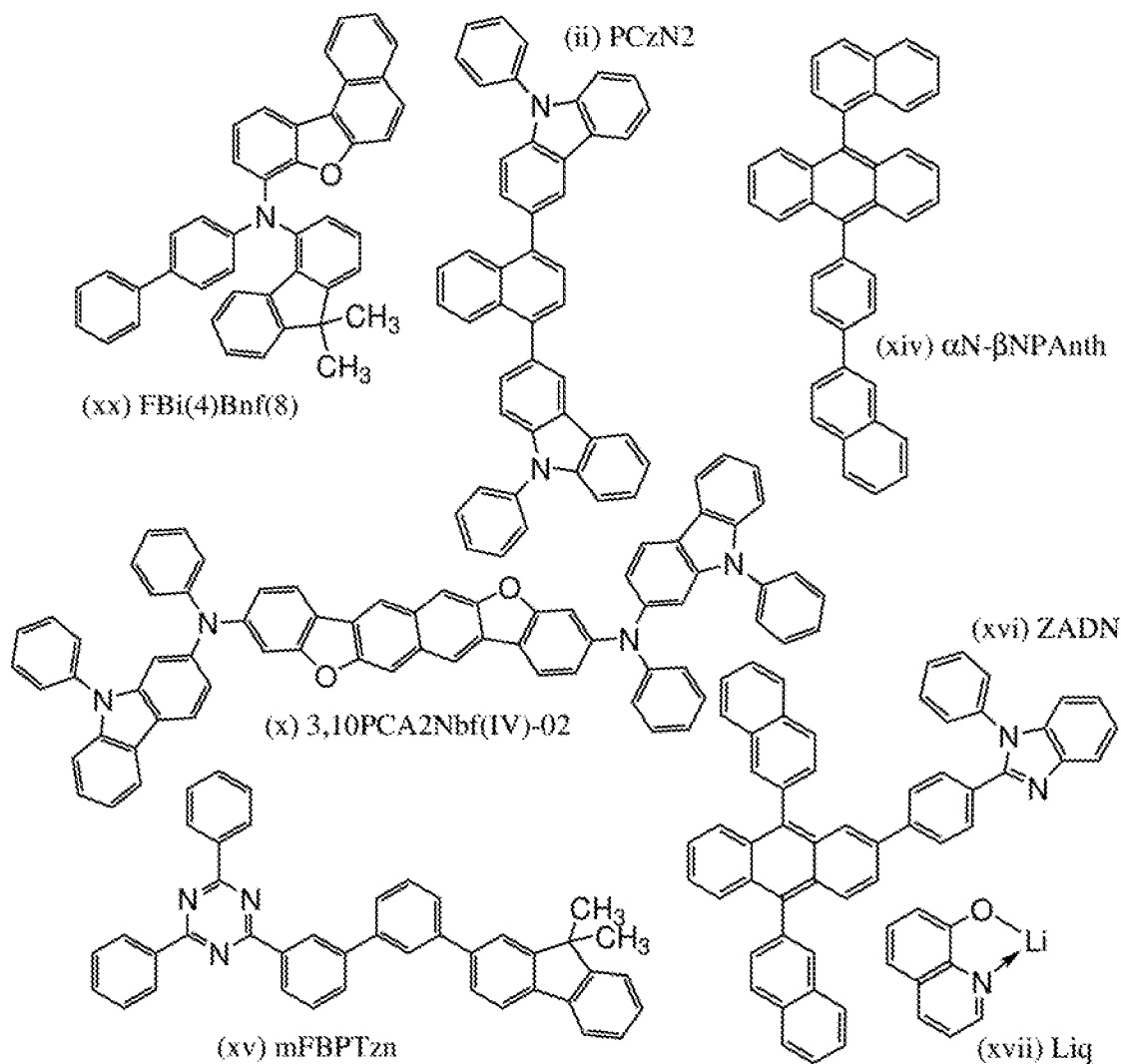
[実施例14]

[0519]

本実施例では、実施の形態で説明した本発明の一態様の発光デバイスについて説明する。本実施例で用いた有機化合物の構造式を以下に示す。

[0520]

[化71]



[0521]

(発光デバイス10の作製方法)

まず、ガラス基板上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第1の電極101を形成した。なお、その膜厚は110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

[0522]

次に、基板上に発光デバイス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。

[0523]

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。

[0524]

次に、第1の電極101が形成された面が下方となるように、第1の電極101が形成された基板を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、第1の電極101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により上記構造式 (xx) で表されるN-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-4-イル)-ベンゾ[b]ナフト[1,2-d]フラン-8-アミン (略称: FBi(4)Bnf(8)) とALD-MP001Q (分析工房株式会社、材料シリアル番

号：1 S 2 0 1 8 0 3 1 4) とを、重量比で 1 : 0.1 (= F B i (4) B n f (8) : A L D - M P 0 0 1 Q) となるように 10 nm 共蒸着して正孔注入層 1 1 1 を形成した。

[0525]

次に、正孔注入層 1 1 1 上に、F B i (4) B n f (8) を膜厚 90 nm となるように蒸着した後、上記構造式 (i i) で表される 3, 3' - (ナフタレン-1, 4-ジイル) ビス (9-フェニル-9 H-カルバゾール) (略称：P C z N 2) を 10 nm となるように蒸着して正孔輸送層 1 1 2 を形成した。

[0526]

続いて、上記構造式 (x i v) で表される 9- (1-ナフチル) -10- [4- (2-ナフチル) フェニル] アントラセン (略称： α N - β N P A n t h) と、上記構造式 (x) で表される 3, 10-ビス [N- (9-フェニル-9 H-カルバゾール-2-イル) -N-フェニルアミノ] ナフト [2, 3-b ; 6, 7-b'] ビスベンゾフラン (略称：3, 10 P C A 2 N b f (I V) -02) とを、重量比で 1 : 0.015 (= α N - β N P A n t h : 3, 10 P C A 2 N b f (I V) -02) となるように 25 nm 共蒸着して発光層 1 1 3 を形成した。

[0527]

その後、発光層 1 1 3 上に、上記構造式 (x v) で表される 2- [3' - (9, 9-ジメチル-9 H-フルオレン-2-イル) -1, 1' -ビフェニル-3-イル] -4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン (略称：m F B P T z n) を 10 nm 形成し、さらに上記構造式 (x v i) で表される 2- {4- [9, 10-ジ (ナフタレン-2-イル) -2-アントリル] フェニル} -1-フェニル-1 H-ベンゾイミダゾール (略称：Z A D N) と上記構造式 (x v i i) で表される 8-キノリノラトリチウム (略称：L i q) とを、重量比で 1 : 1、膜厚 15 nm となるように共蒸着して電子輸送層 1 1 4 を形成した。

[0528]

電子輸送層 1 1 4 を形成した後、L i q を 1 nm となるように蒸着して電子注入層 1 1 5 を形成し、アルミニウムを膜厚 200 nm となるように蒸着することで第 2 の電極 1 0 2 を形成して本実施例の発光デバイス 1 0 を作製した。

[0529]

発光デバイス 1 0 の素子構造を以下の表にまとめる。

[0530]

[表 15]

	正孔 注入層	正孔 輸送層		発光層	電子 輸送層	
		1	2		1	2
	10nm	90nm	10nm	25nm	10nm	15nm
発光 デバイス 10	FBi(4)Bnf(8): ALD-MP001Q (1:0.1)	FBi(4)Bnf(8)	PCzN2	α N- β NPAnth: 3,10PCA2Nbf(IV)-02 (1:0.015)	mFBPTzn	ZADN :Liq (1:1)

[0531]

上記発光デバイスを、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光デバイスが大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業 (シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に UV 処理、80 °C

にて1時間熱処理)を行った後、初期特性について測定を行った。

[0532]

発光デバイス10の輝度－電流密度特性を図85に、電流効率－輝度特性を図86に、輝度－電圧特性を図87に、電流－電圧特性を図88に、外部量子効率－輝度特性を図89に、発光スペクトルを図90に、示す。また、発光デバイス10の1000cd/m²付近における主要な特性を以下に示す。

[0533]

[表16]

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	色度x	色度y	電流効率 (cd/A)	外部量子 効率(%)
発光デバイス10	5.2	0.36	9.0	0.14	0.12	10.6	10.8

[0534]

図85乃至図90より、本発明の一態様の発光デバイスである発光デバイス10は、発光効率の良好なELデバイスであることがわかった。

[符号の説明]

[0535]

101：第1の電極、102：第2の電極、103：EL層、111：正孔注入層、112：正孔輸送層、113：発光層、114：電子輸送層、115：電子注入層、116：電荷発生層、117：P型層、118：電子リレー層、119：電子注入バッファ層、400：基板、401：第1の電極、403：EL層、404：第2の電極、405：シール材、406：シール材、407：封止基板、412：パッド、420：ICチップ、501：陽極、502：陰極、511：第1の発光ユニット、512：第2の発光ユニット、513：電荷発生層、601：駆動回路部（ソース線駆動回路）、602：画素部、603：駆動回路部（ゲート線駆動回路）、604：封止基板、605：シール材、607：空間、608：配線、609：FPC（フレキシブルプリントサーキット）、610：素子基板、611：スイッチング用FET、612：電流制御用FET、613：第1の電極、614：絶縁物、616：EL層、617：第2の電極、618：発光デバイス、951：基板、952：電極、953：絶縁層、954：隔壁層、955：EL層、956：電極、1001：基板、1002：下地絶縁膜、1003：ゲート絶縁膜、1006：ゲート電極、1007：ゲート電極、1008：ゲート電極、1020：第1の層間絶縁膜、1021：第2の層間絶縁膜、1022：電極、1024W：第1の電極、1024R：第1の電極、1024G：第1の電極、1024B：第1の電極、1025：隔壁、1028：EL層、1029：第2の電極、1031：封止基板、1032：シール材、1033：透明な基材、1034R：赤色の着色層、1034G：緑色の着色層、1034B：青色の着色層、1035：ブラックマトリクス、1036：オーバーコート層、1037：第3の層間絶縁膜、1040：画素部、1041：駆動回路部、1042：周辺部、2001：筐体、2002：光源、2100：ロボット、2110：演算装置、2101：照度センサ、2102：マイクロフォン、2103：上部カメラ、2104：スピーカ、2105：ディスプレイ、2106：下部カメラ、2107：障害物センサ、2108：移動機構、3001：照明装置、5000：筐体、5001：表示部、5002：表示部、5003：スピーカ、5004：LEDランプ、5005：操作キー、5006：接続端子、5007：センサ、5008：マイクロフォン、5012：支持部、5

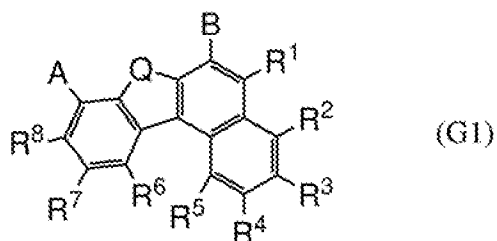
013 : イヤホン、5100 : 掃除ロボット、5101 : ディスプレイ、5102 : カメラ、5103 : ブラシ、5104 : 操作ボタン、5150 : 携帯情報端末、5151 : 筐体、5152 : 表示領域、5153 : 屈曲部、5120 : ゴミ、5200 : 表示領域、5201 : 表示領域、5202 : 表示領域、5203 : 表示領域、7101 : 筐体、7103 : 表示部、7105 : スタンド、7107 : 表示部、7109 : 操作キー、7110 : リモコン操作機、7201 : 本体、7202 : 筐体、7203 : 表示部、7204 : キーボード、7205 : 外部接続ポート、7206 : ポインティングデバイス、7210 : 第2の表示部、7401 : 筐体、7402 : 表示部、7403 : 操作ボタン、7404 : 外部接続ポート、7405 : スピーカ、7406 : マイク、7400 : 携帯電話機、9310 : 携帯情報端末、9311 : 表示パネル、9313 : ヒンジ、9315 : 筐体

請求の範囲

[請求項 1]

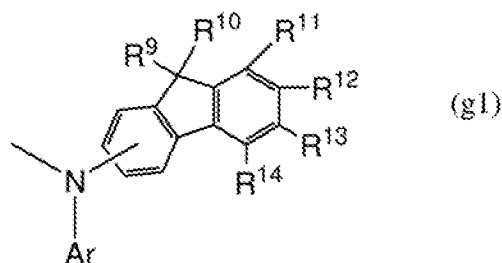
下記一般式 (G 1) で表される有機化合物。

[化 1]



(ただし、上記一般式 (G 1) において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、AおよびBの一方は、下記一般式 (g 1) で表される基であり、他方は、水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、R¹乃至R⁸はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。)

[化 2]



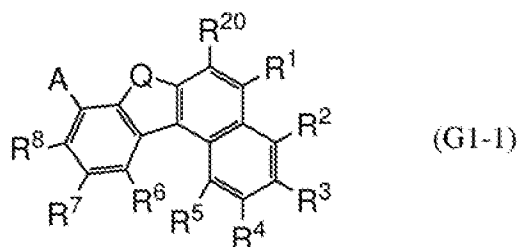
(ただし、上記一般式 (g 1) において、R⁹およびR¹⁰はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、R¹¹乃至R¹⁴はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。またArは置換または無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。)

[請求項 2]

請求項 1 において、

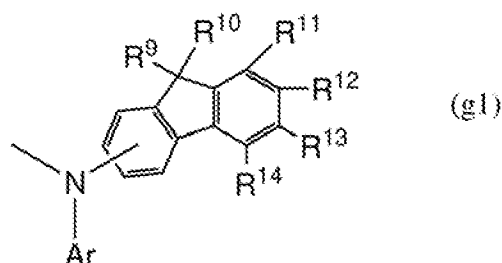
前記一般式 (G 1) が下記一般式 (G 1-1) で表される有機化合物。

[化 3]



(ただし、上記一般式 (G 1 - 1) において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、Aは、下記一般式 (g 1) で表される基であり、R²⁰は、水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、R¹乃至R⁸はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のアルキル基のいずれかを表す。)

[化 4]



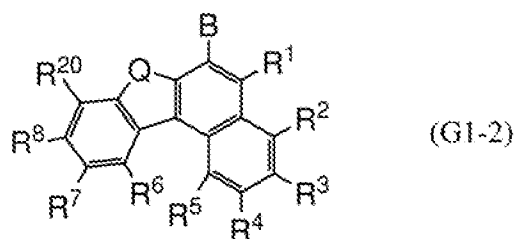
(ただし、上記一般式 (g 1) において、R⁹およびR¹⁰はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、R¹¹乃至R¹⁴はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。またArは置換または無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。)

[請求項 3]

請求項 1 において、

前記一般式 (G 1) が下記一般式 (G 1 - 2) で表される有機化合物。

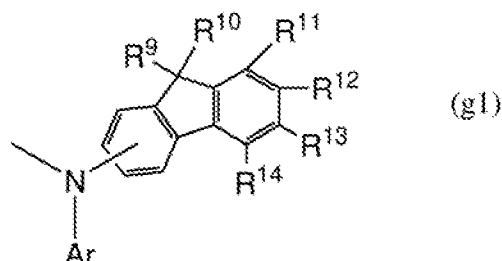
[化 5]



(ただし、上記一般式 (G 1 - 2) において、Qは酸素原子または硫黄原子である。また、Bは、上記一般式 (g 1) で表される基であり、R²⁰は、水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロ

アルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また、 R^1 乃至 R^8 はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のアルキル基のいずれかを表す。)

[化 6]



(ただし、上記一般式 (g 1) において、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、 R^{11} 乃至 R^{14} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また $A r$ は置換または無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。)

[請求項 4]

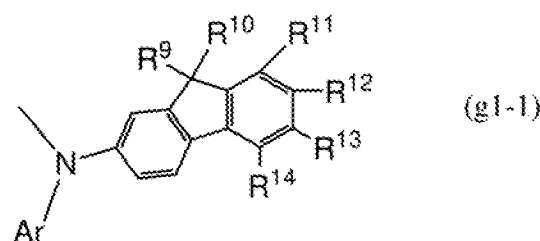
請求項 2 または請求項 3 において、

R^{20} が水素である有機化合物。

[請求項 5]

請求項 1 乃至請求項 4 のいずれか一項において、前記一般式 (g 1) で表される基が、下記一般式 (g 1-1) で表される基である有機化合物。

[化 7]



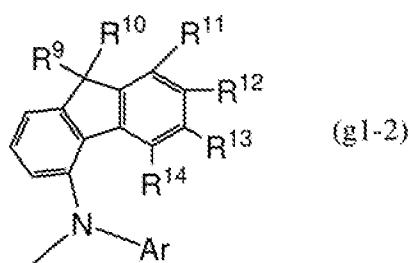
(ただし、上記一般式 (g 1-1) において、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、 R^{11} 乃至 R^{14} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また $A r$ は置換または無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。)

[請求項 6]

請求項 1 乃至請求項 4 のいずれか一項において、前記一般式 (g 1) で表される基が、下記一般式 (g

1-2) で表される基である有機化合物。

[化8]



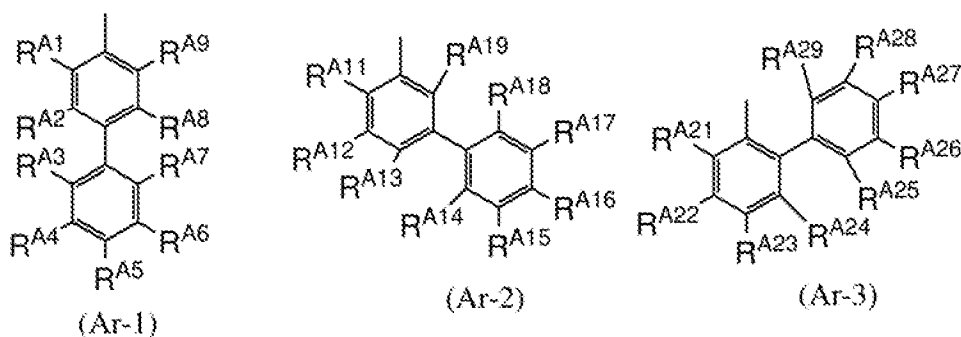
(ただし、上記一般式 (g 1-2) において、 R^9 および R^{10} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基、および置換または無置換のフェニル基のいずれかを表し、 R^{11} 乃至 R^{14} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。また Ar は置換または無置換の炭素数 6 乃至 13 のアリール基を表す。)

[請求項 7]

請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか一項において、

前記 Ar が、下記一般式 ($Ar-1$) 乃至 ($Ar-3$) で表される有機化合物。

[化 9]



(ただし、上記一般式 ($Ar-1$) 乃至 ($Ar-3$) において、 RA^1 乃至 RA^9 、 RA^{11} 乃至 RA^{19} および RA^{21} 乃至 RA^{29} はそれぞれ独立に水素、炭素数 1 乃至 6 のアルキル基、炭素数 3 乃至 6 の環式炭化水素基、炭素数 1 乃至 6 のアルコキシ基、シアノ基、ハロゲン、炭素数 1 乃至 6 のハロアルキル基および置換または無置換の炭素数 6 乃至 60 の芳香族炭化水素基のいずれかを表す。)

[請求項 8]

請求項 6 において、 RA^1 乃至 RA^9 、 RA^{11} 乃至 RA^{19} および RA^{21} 乃至 RA^{29} が水素である有機化合物。

[請求項 9]

請求項 1 乃至請求項 8 のいずれか一項において、

R^9 および R^{10} がメチル基である有機化合物。

[請求項 10]

請求項 1 乃至請求項 9 のいずれか一項において、

R^1 乃至 R^8 が水素である有機化合物。

[請求項 1 1]

請求項 1 乃至請求項 1 0 のいずれか一項において、
 R^{11} 乃至 R^{14} が水素である有機化合物。

[請求項 1 2]

請求項 1 乃至請求項 1 1 のいずれか一項において、
Q が酸素原子である有機化合物。

[請求項 1 3]

請求項 1 乃至請求項 1 2 のいずれか一項に記載の有機化合物を含む光デバイス。

[請求項 1 4]

請求項 1 乃至請求項 1 2 のいずれか一項に記載の有機化合物を含む発光デバイス。

[請求項 1 5]

請求項 1 3 に記載の光デバイスと、センサ、操作ボタン、スピーカ、または、マイクと、
を有する電子機器。

[請求項 1 6]

請求項 1 4 に記載の発光デバイスと、センサ、操作ボタン、スピーカ、または、マイクと、
を有する電子機器。

[請求項 1 7]

請求項 1 3 に記載の光デバイスと、トランジスタ、または、基板と、を有する発光装置。

[請求項 1 8]

請求項 1 4 に記載の発光デバイスと、トランジスタ、または、基板と、を有する発光装置。

[請求項 1 9]

請求項 1 3 に記載の光デバイスと、筐体と、を有する照明装置。

[請求項 2 0]

請求項 1 4 に記載の発光デバイスと、筐体と、を有する照明装置。

図1A

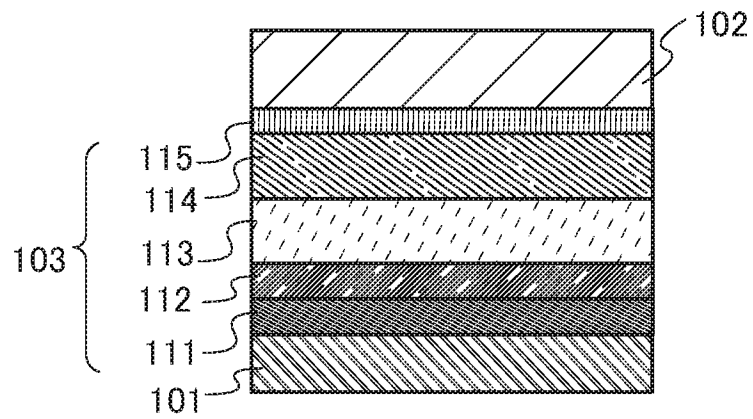


図1B

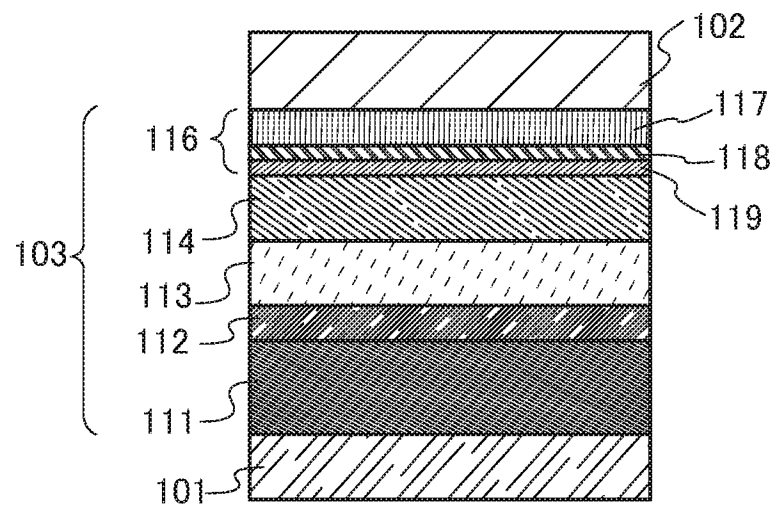
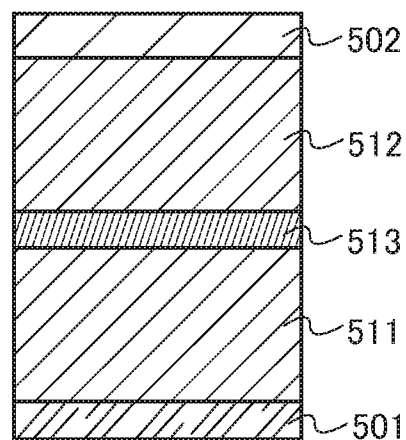
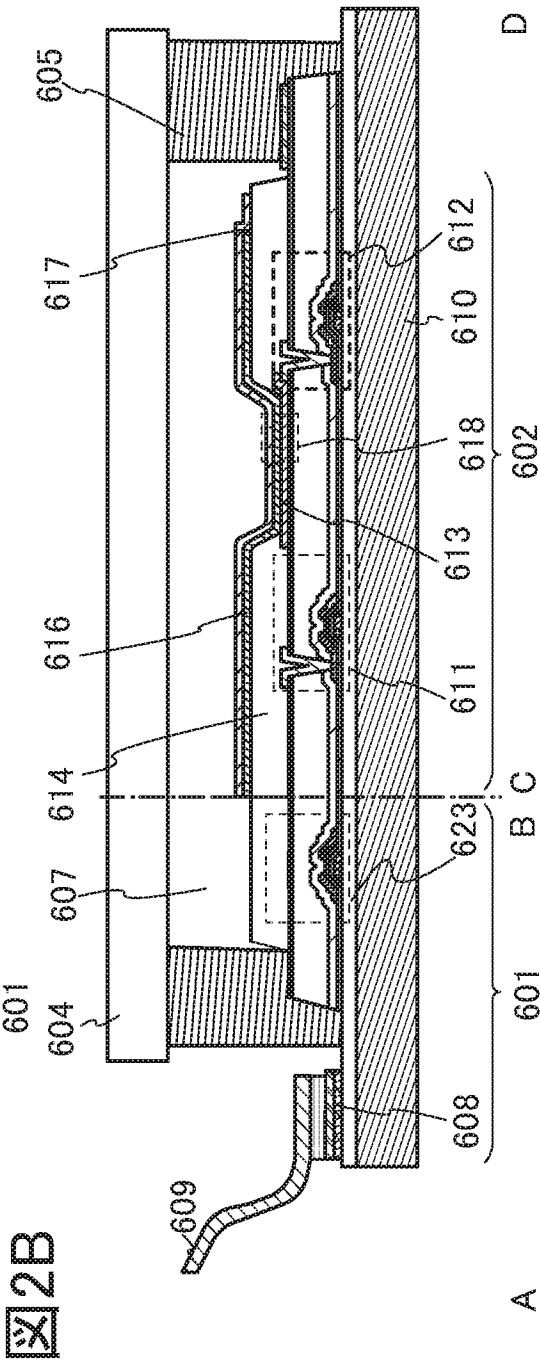
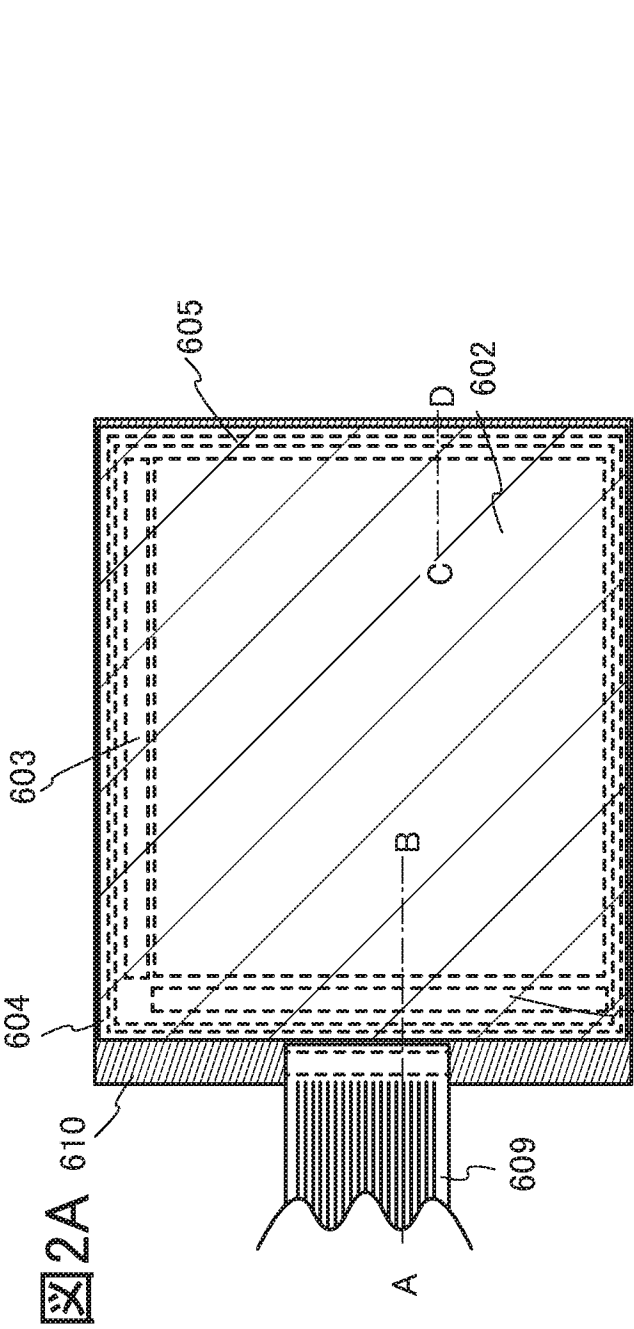
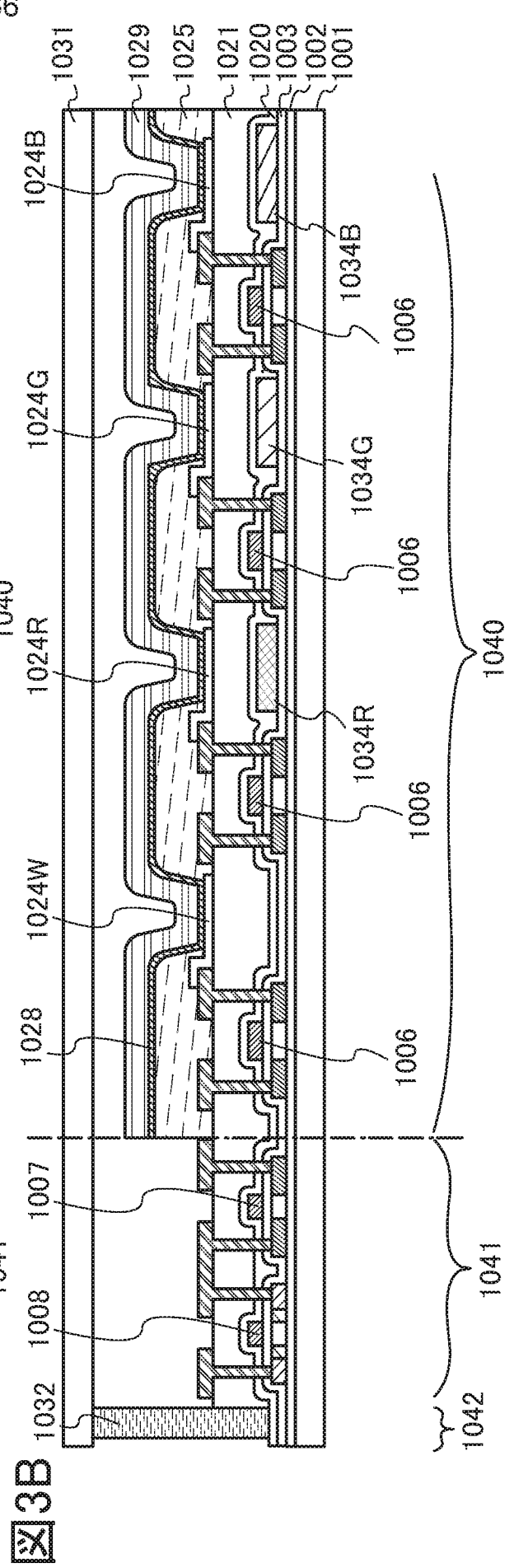
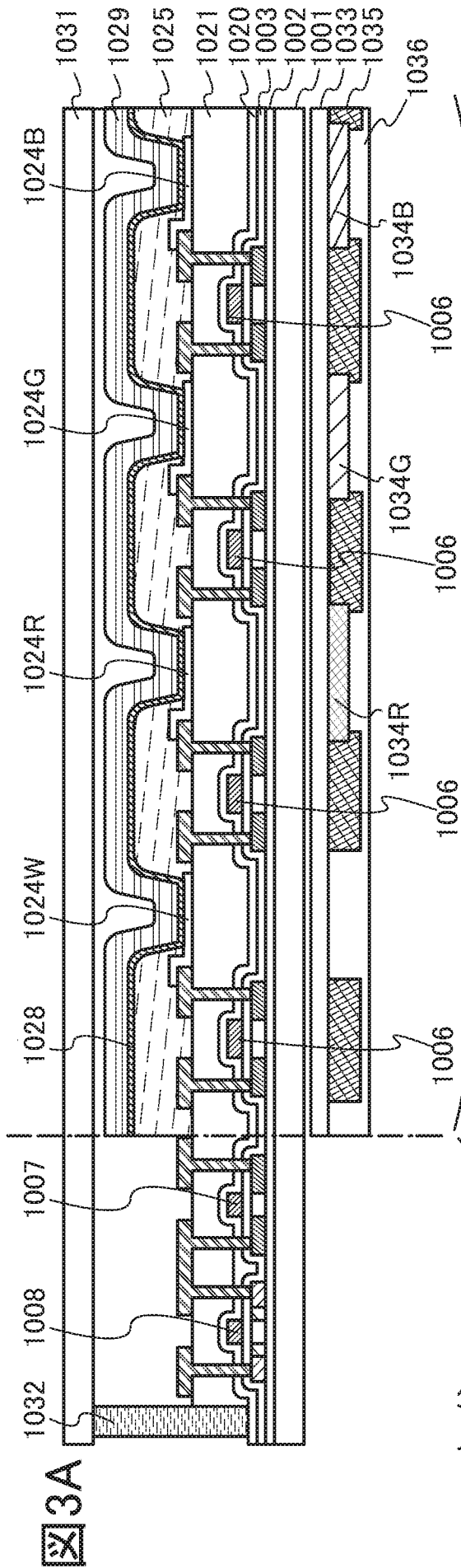


図1C







4

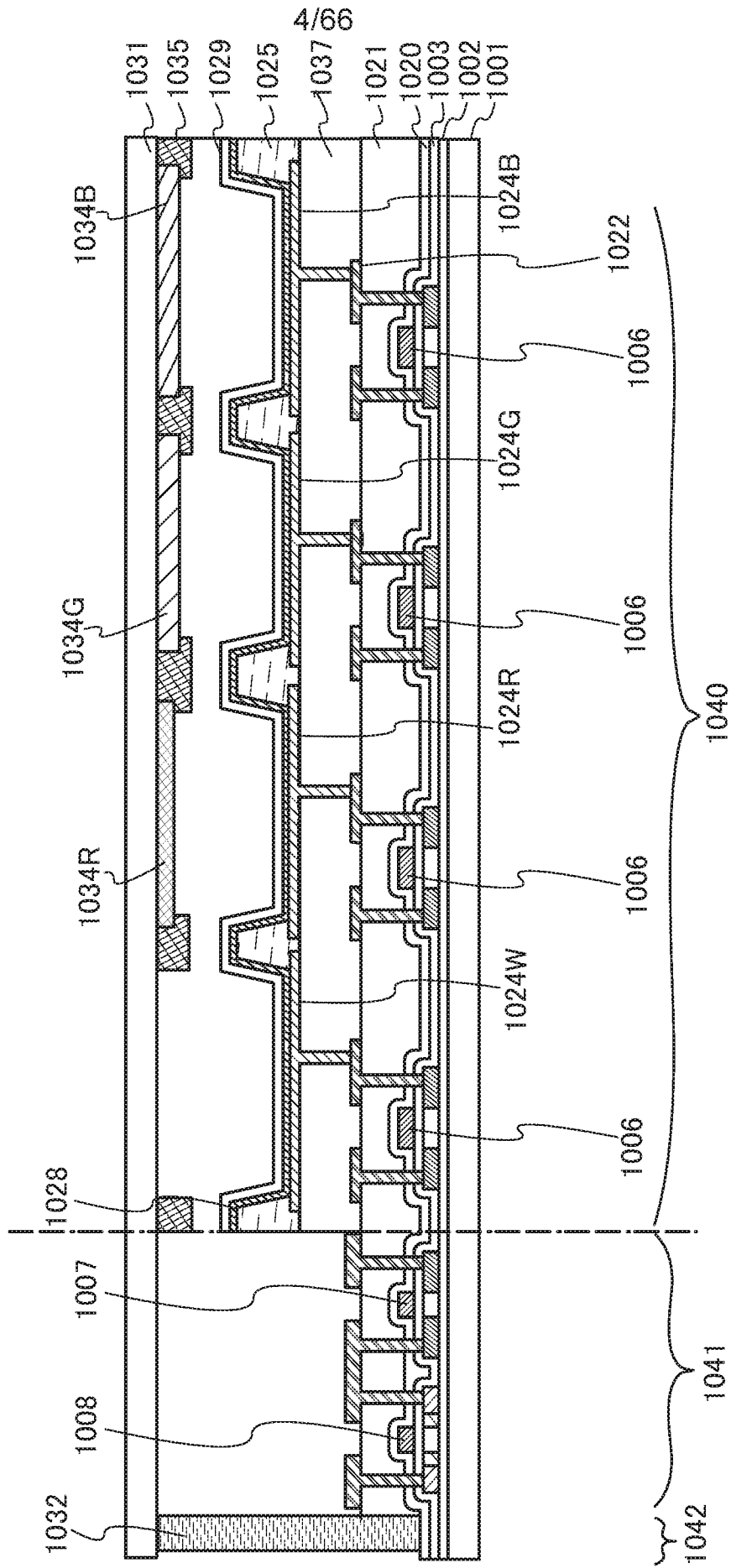


図5A

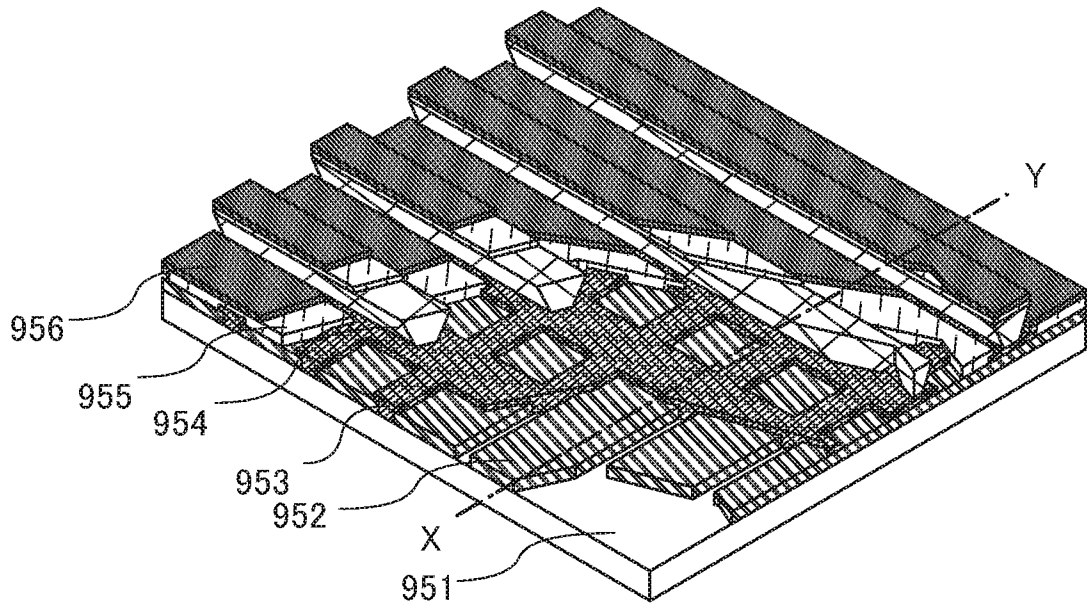
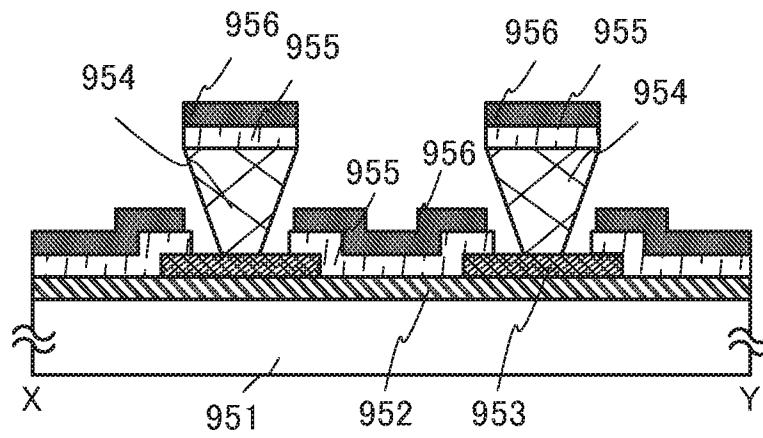
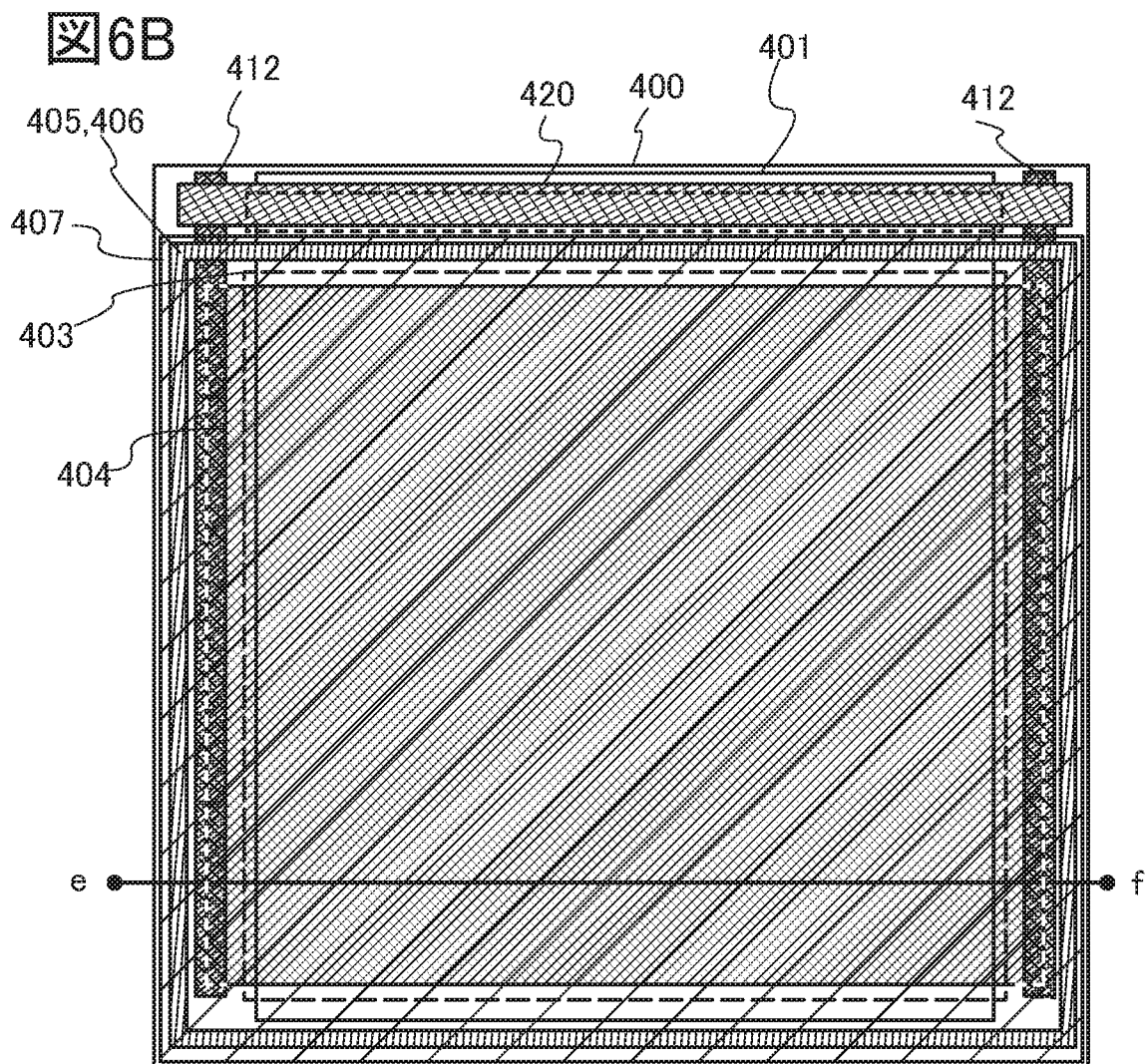
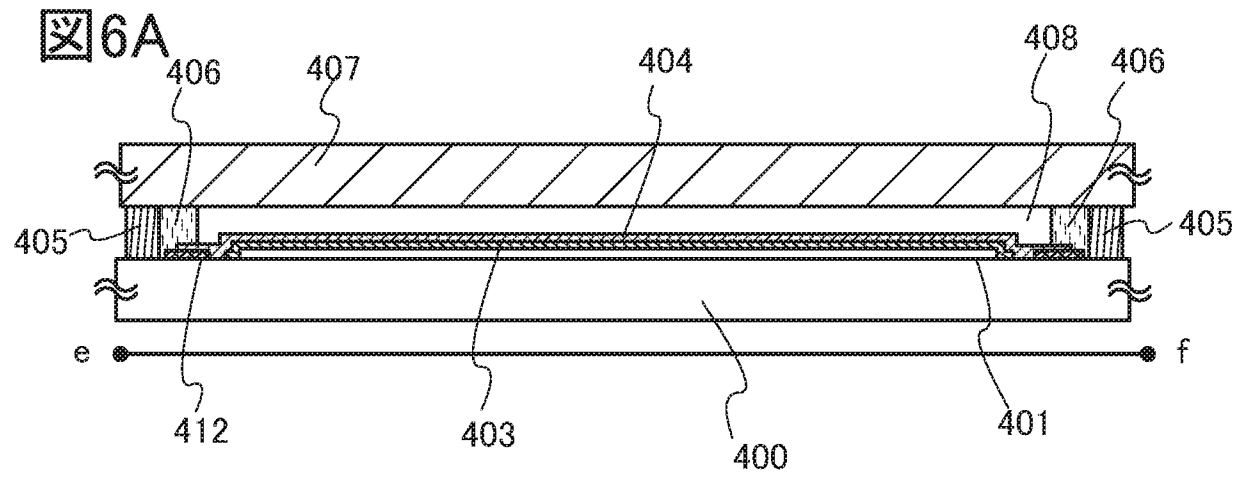


図5B





7/66

图7A

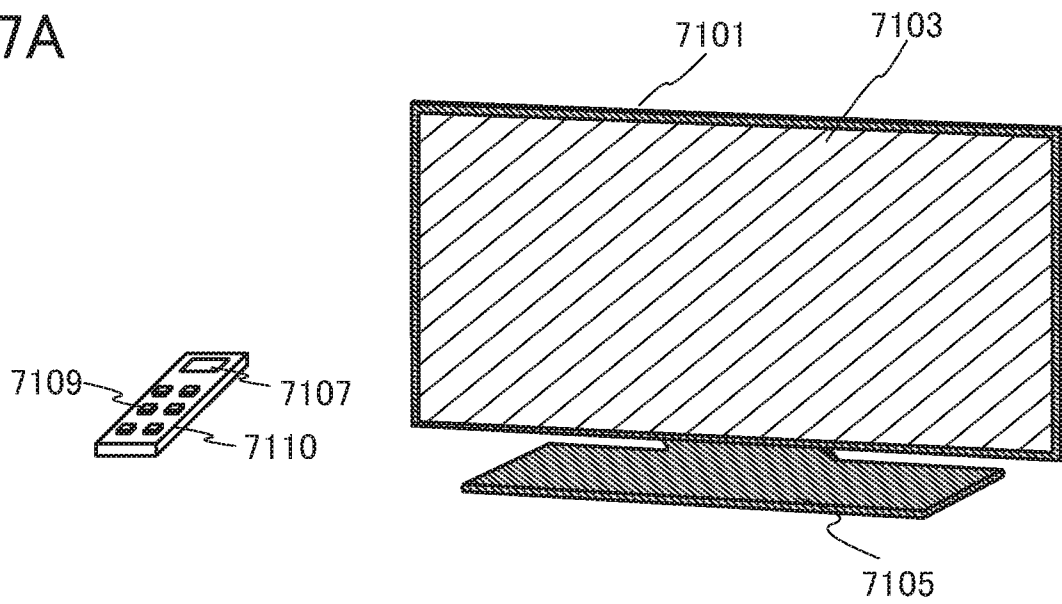


图7B1

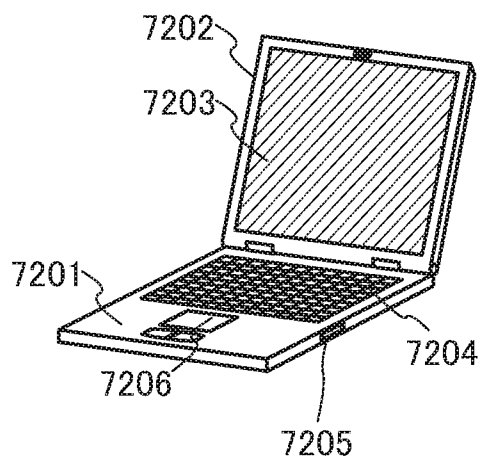


图7B2

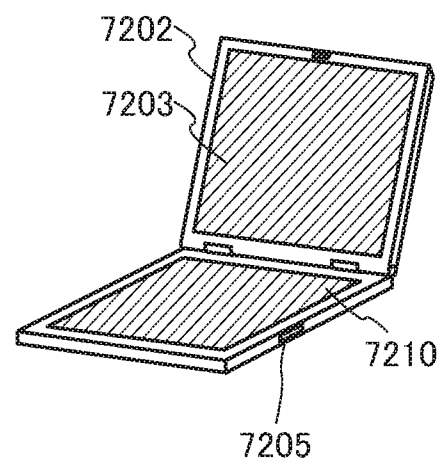


图7C

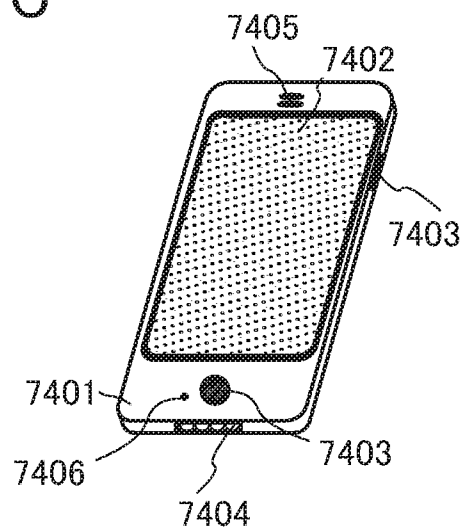


図8A

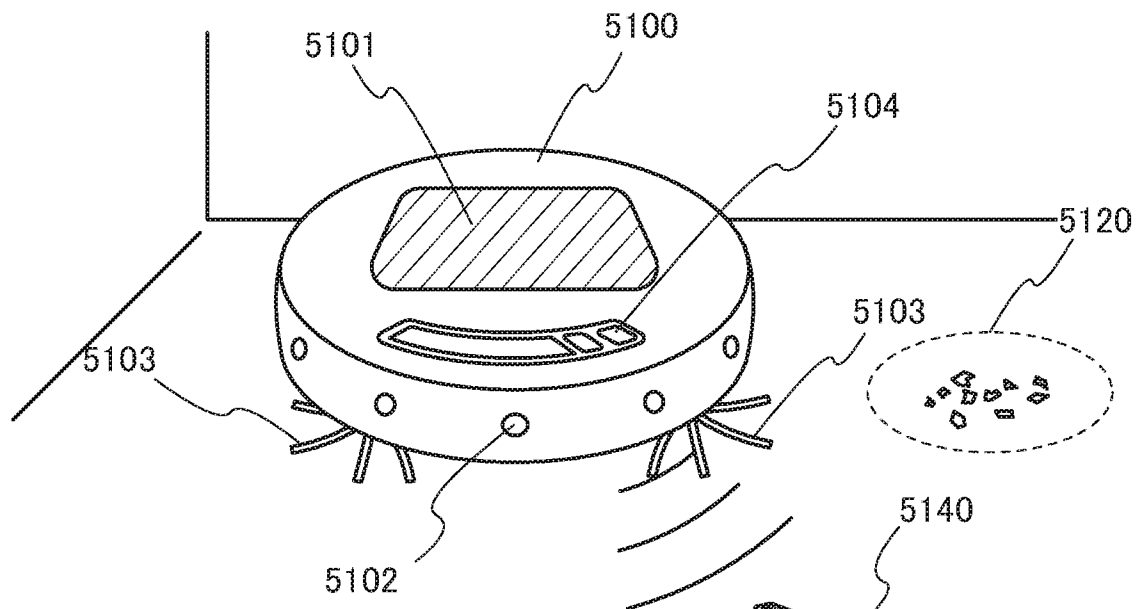


図8B

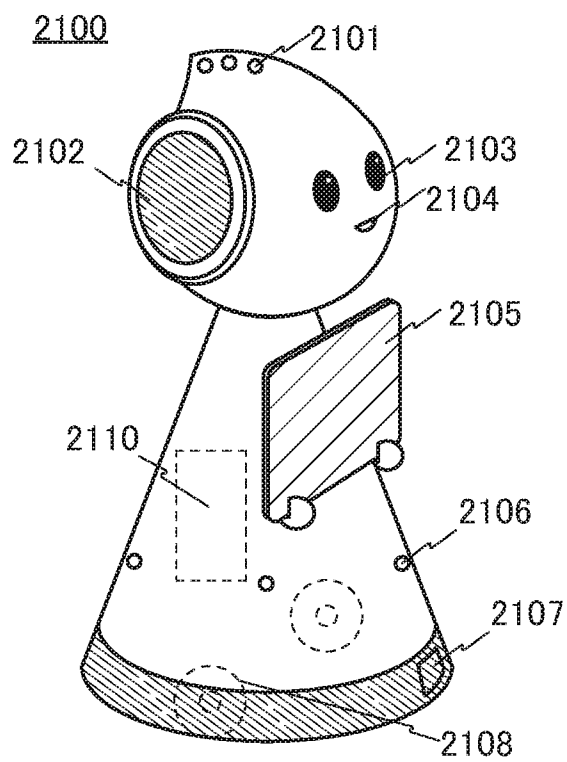


図8C

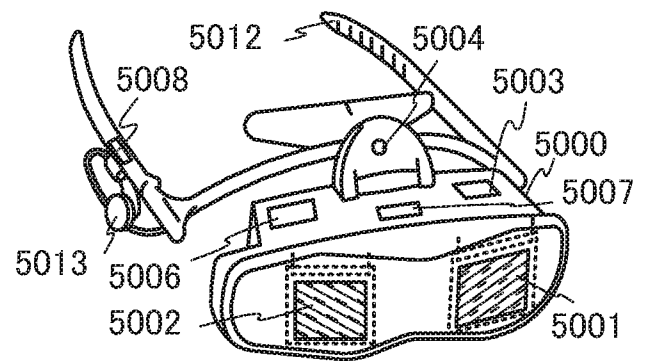


図9

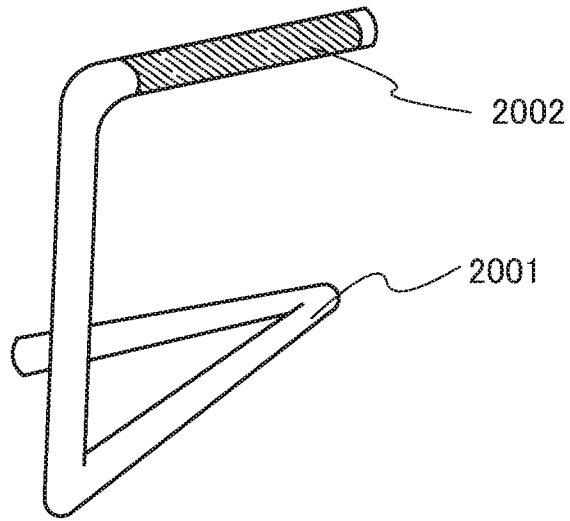


図10

10/66

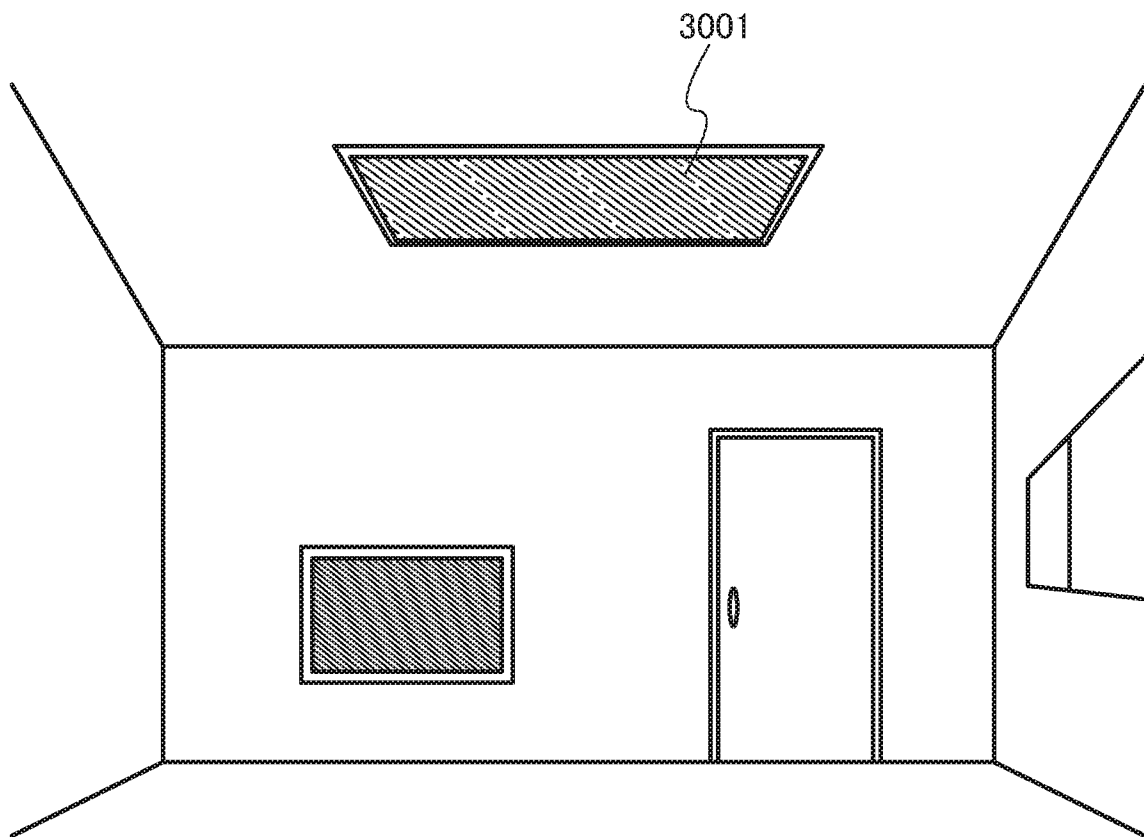


图 11

11/66

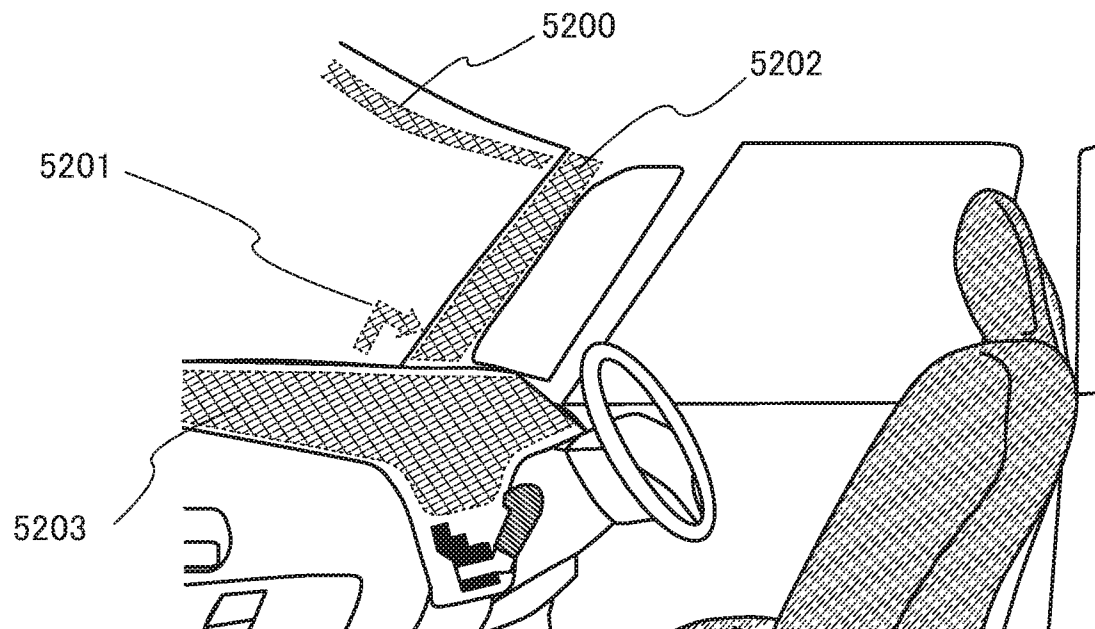


図 12A

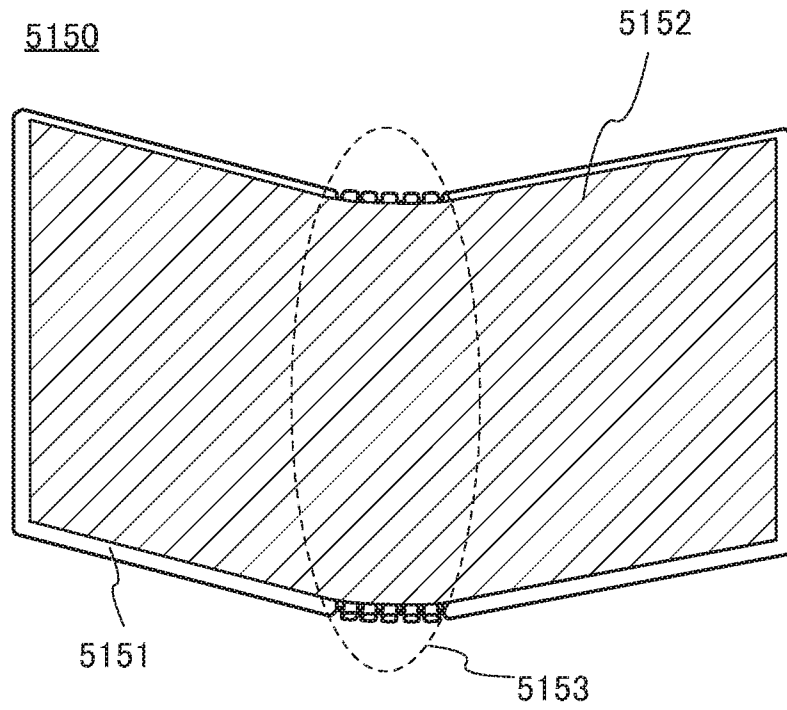


図 12B

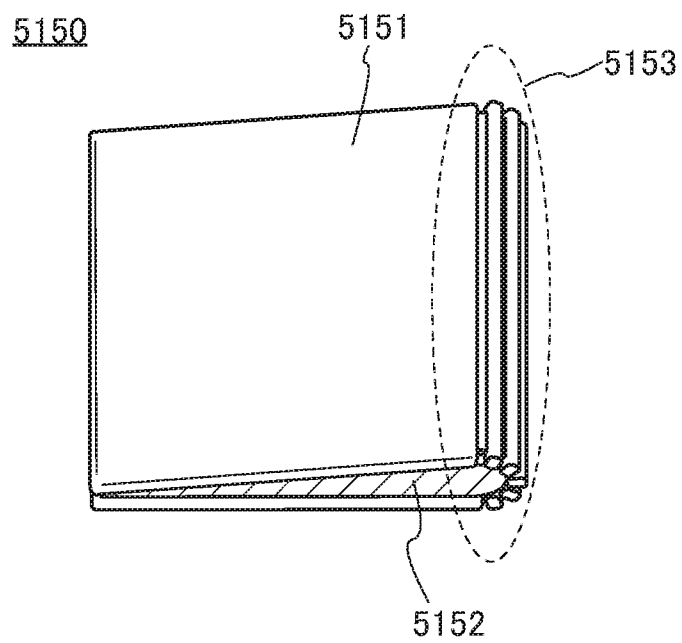


図13A

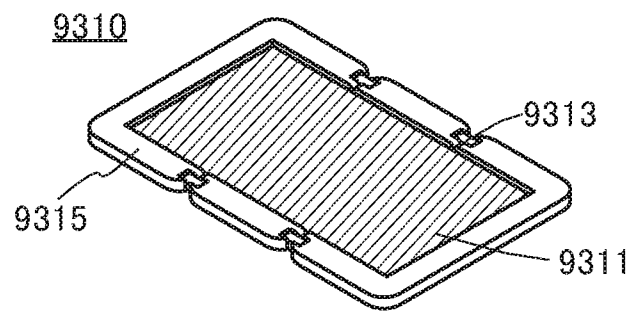


図13B

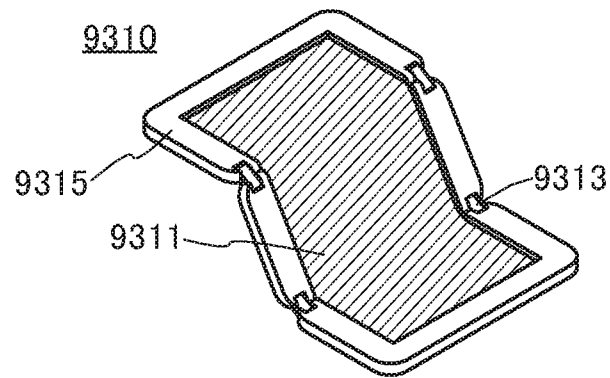


図13C

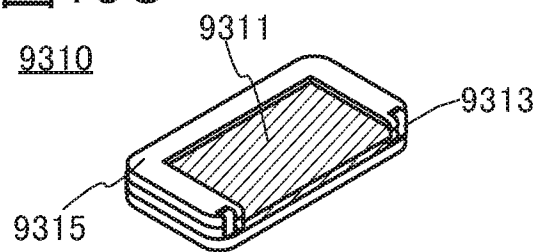


図14A

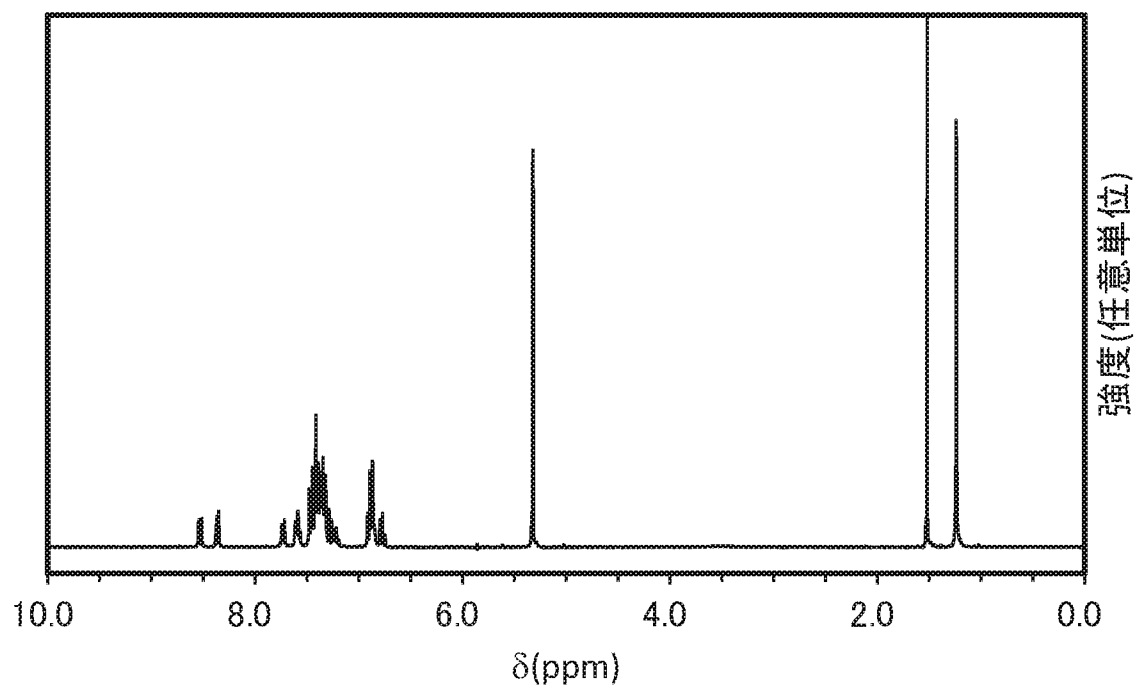


図14B

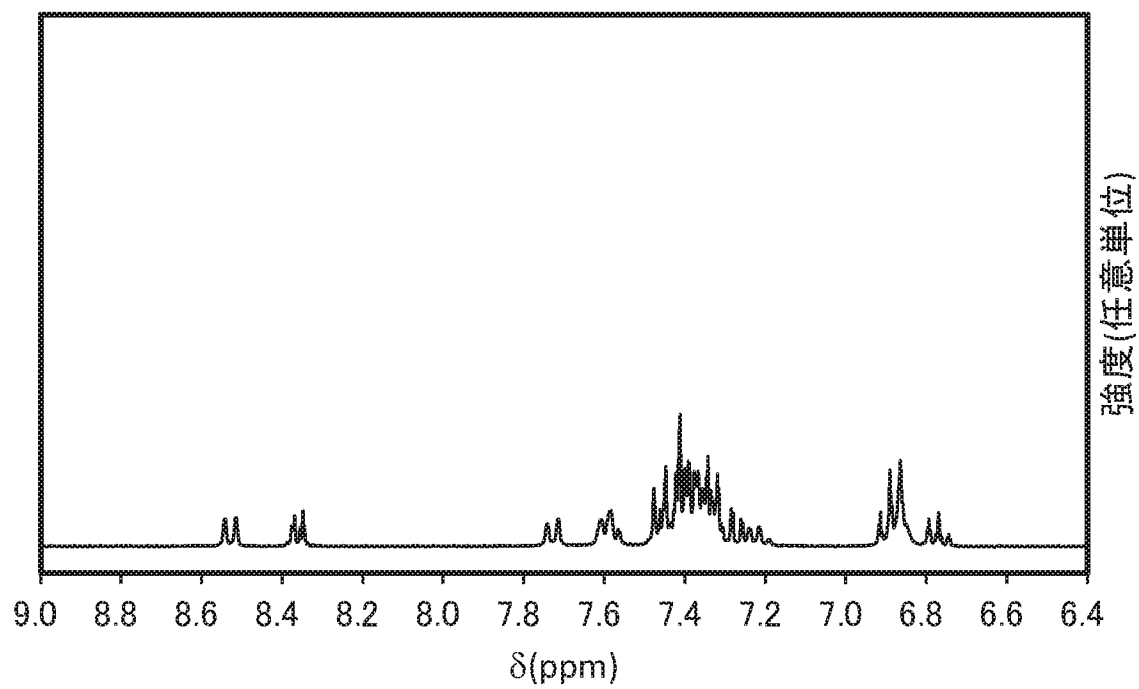


図 15

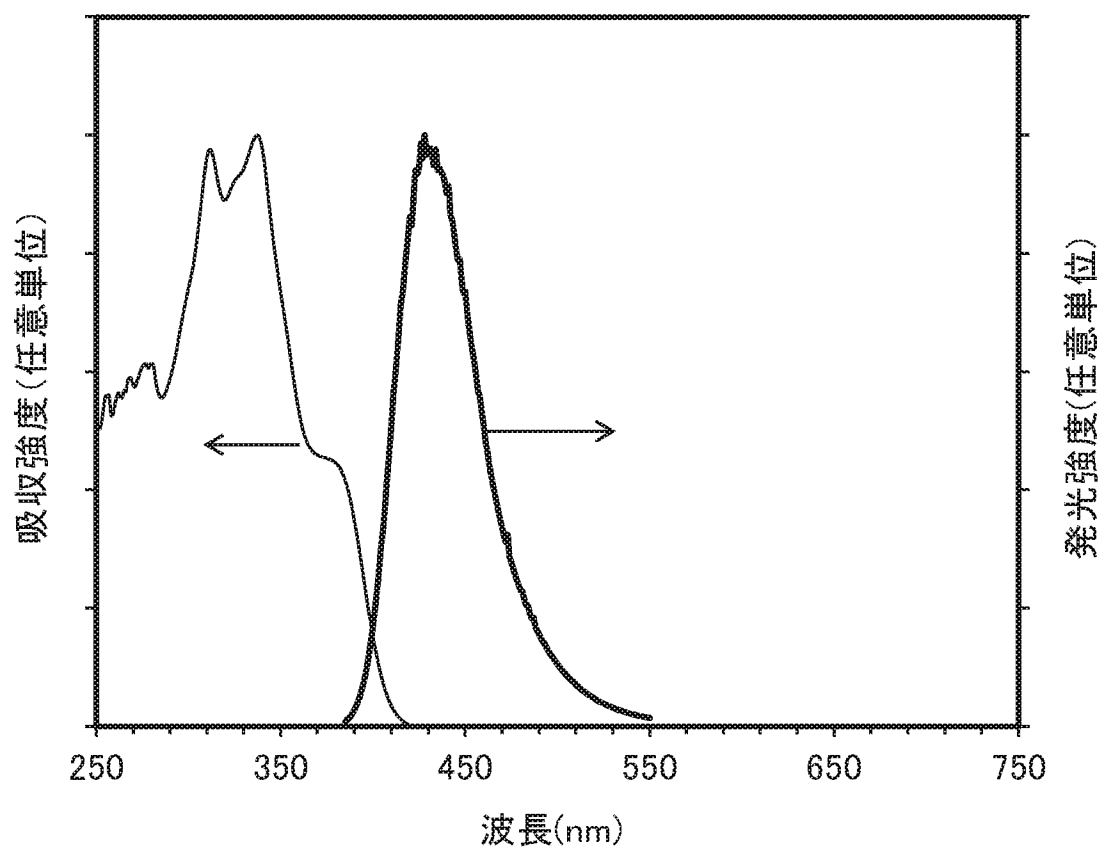


図 16

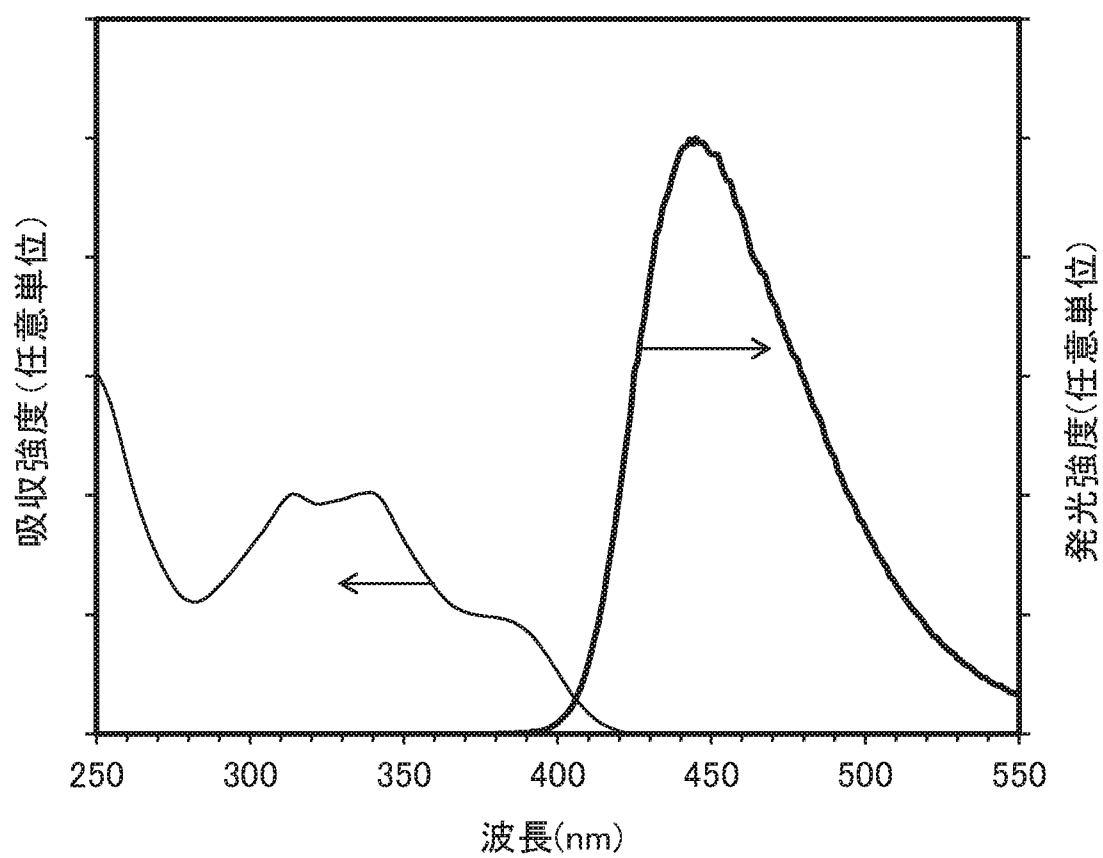


図17A

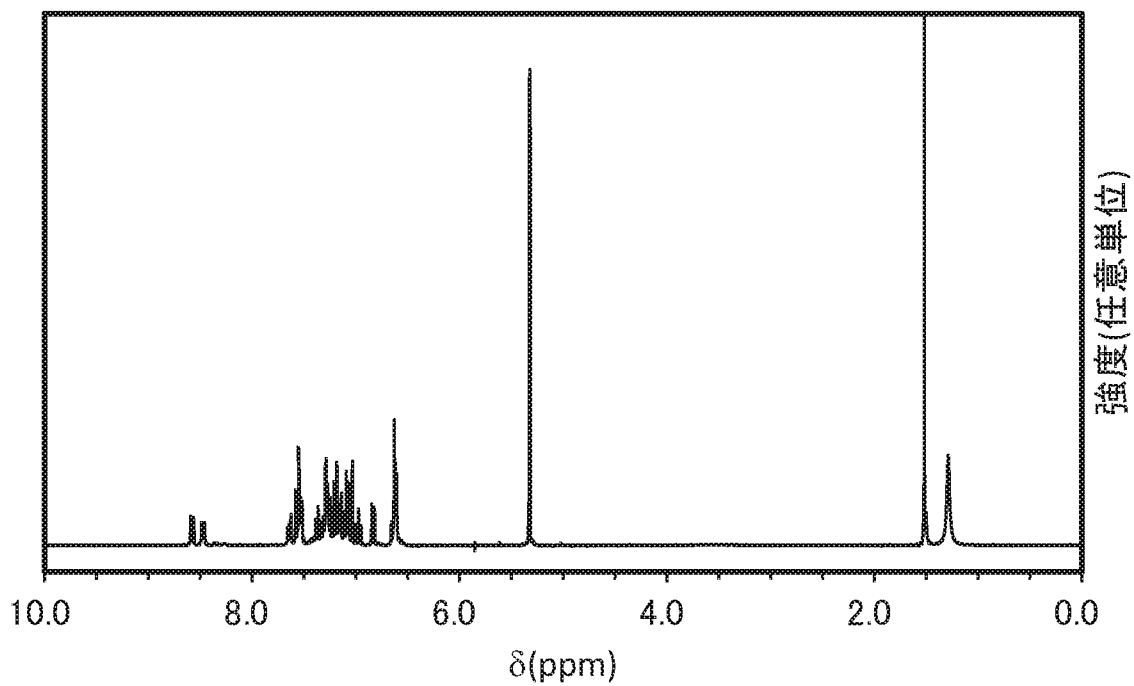


図17B

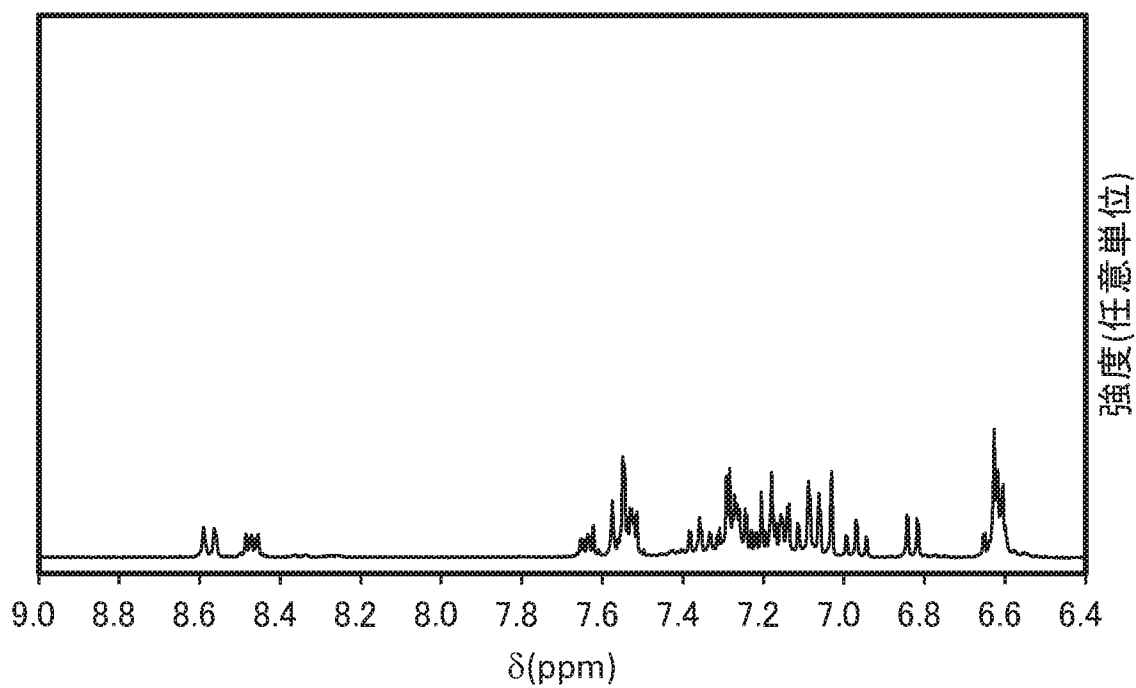


図 18

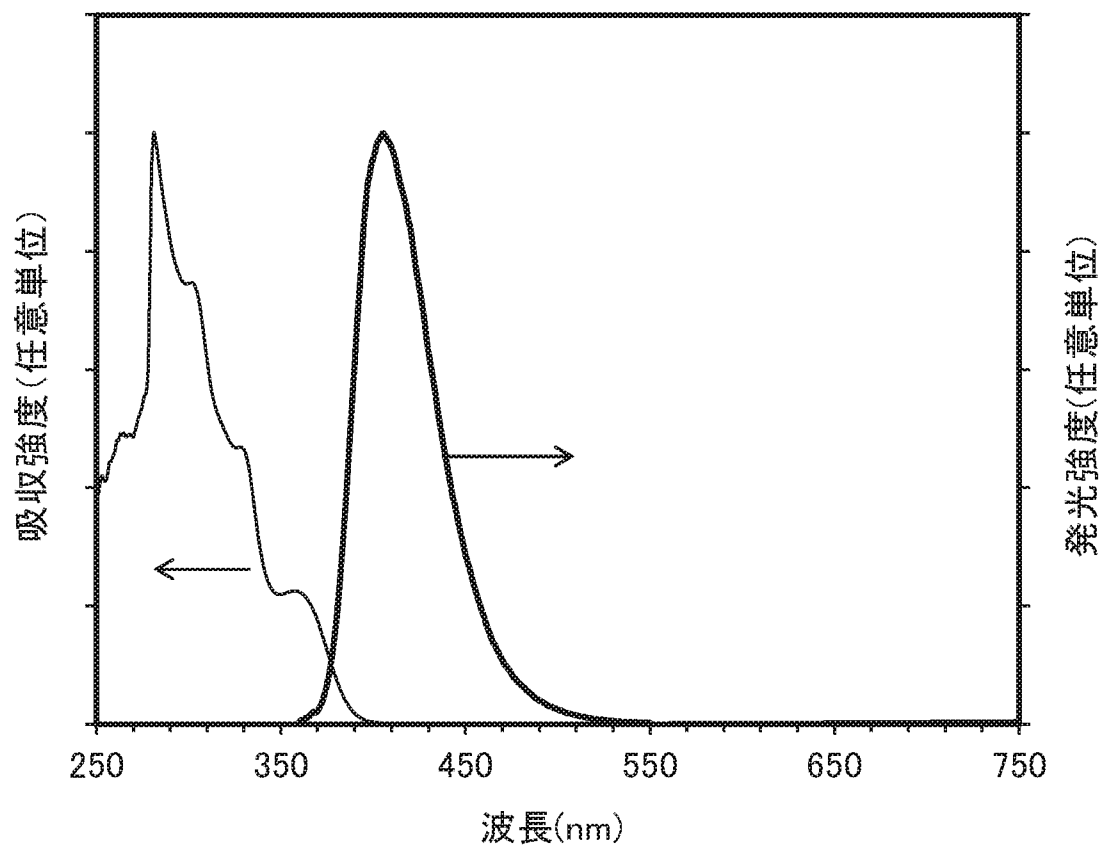


図 19

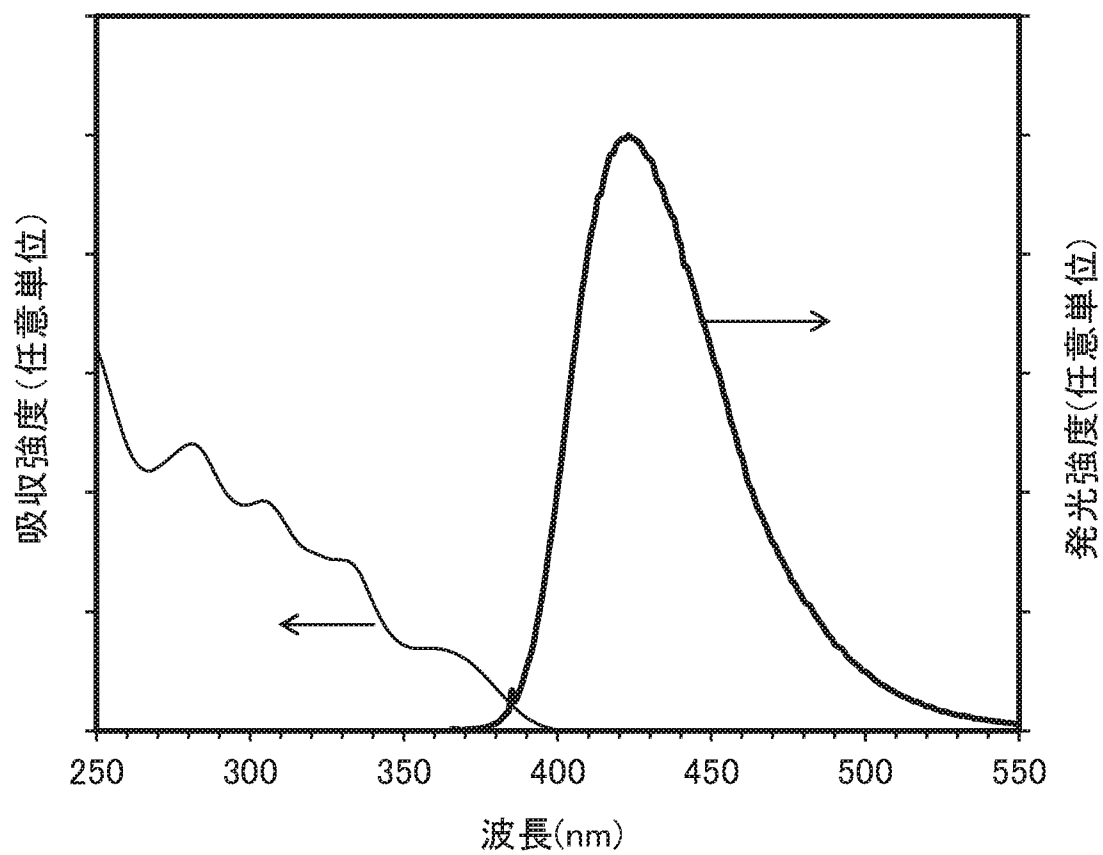


図20A

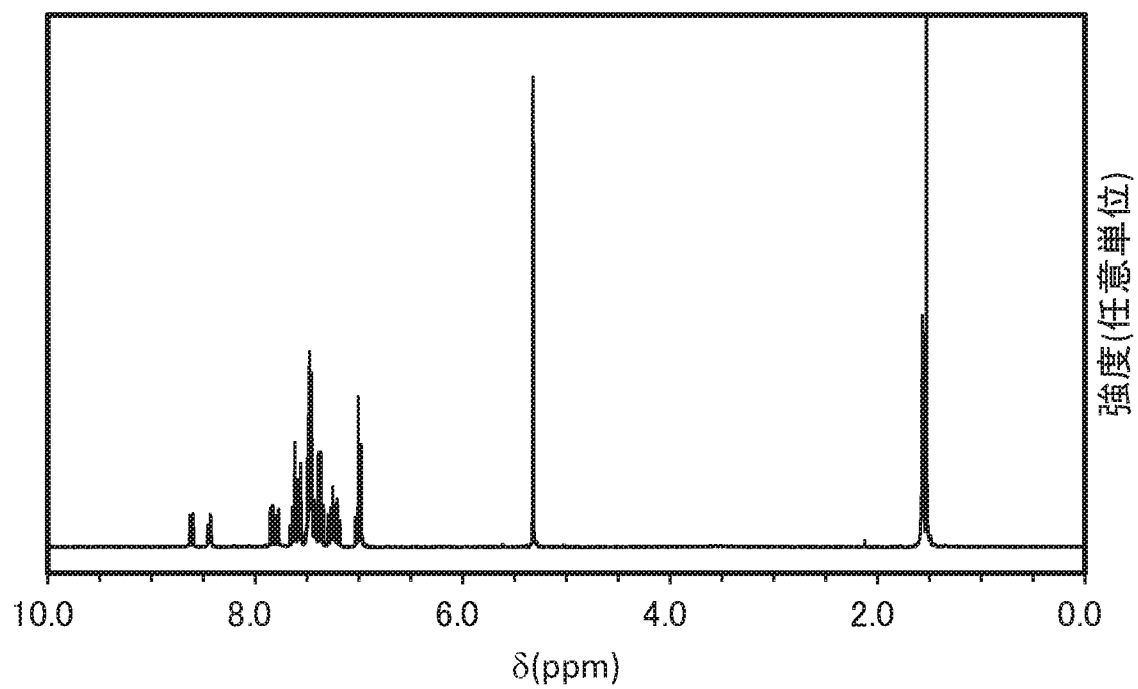


図20B

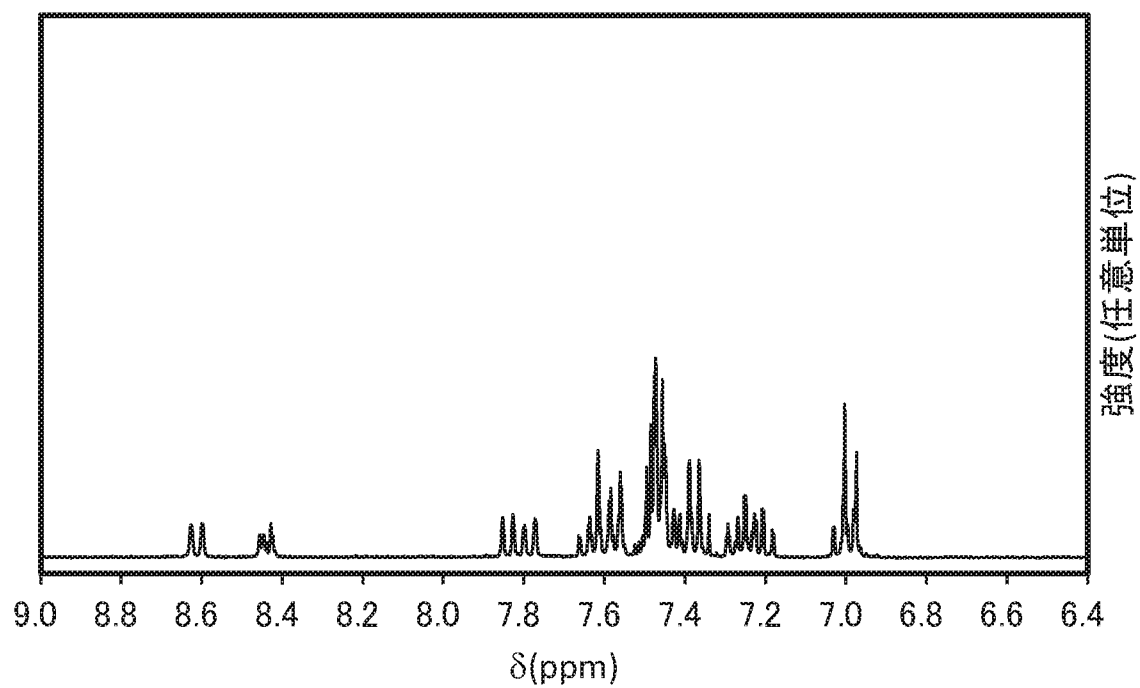


図 21

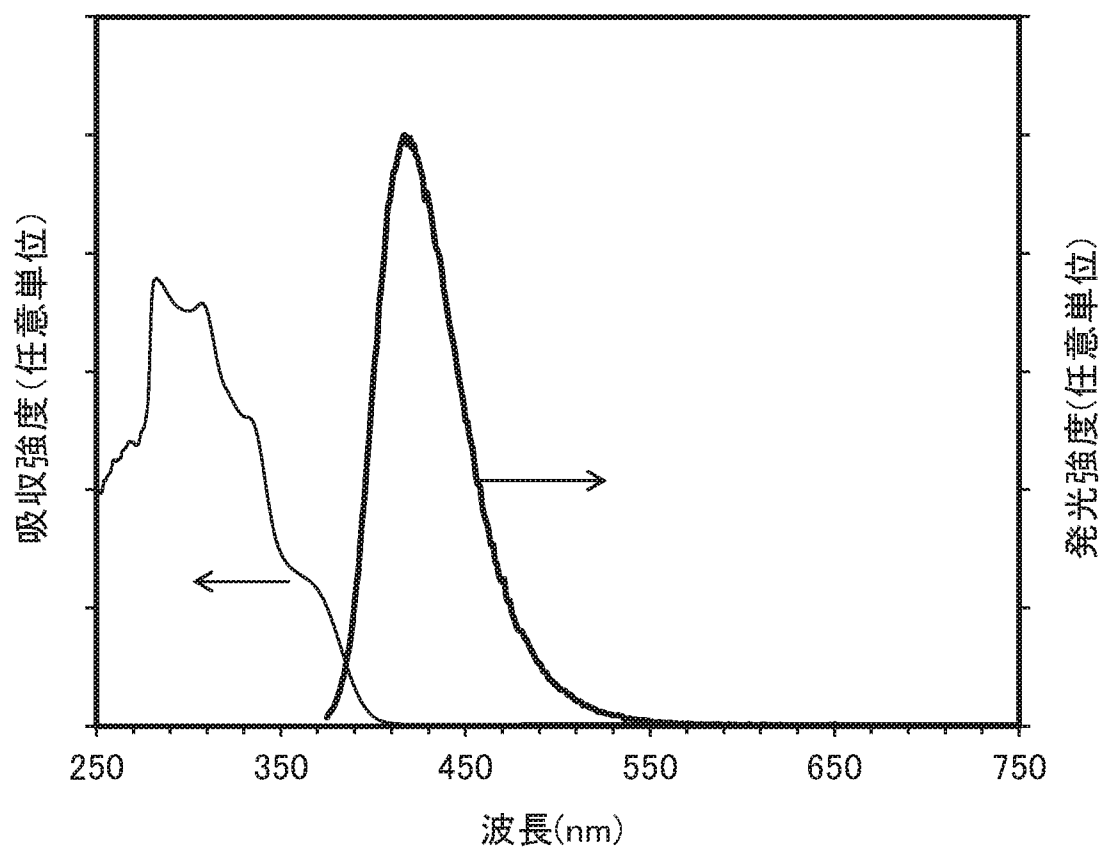


図 22

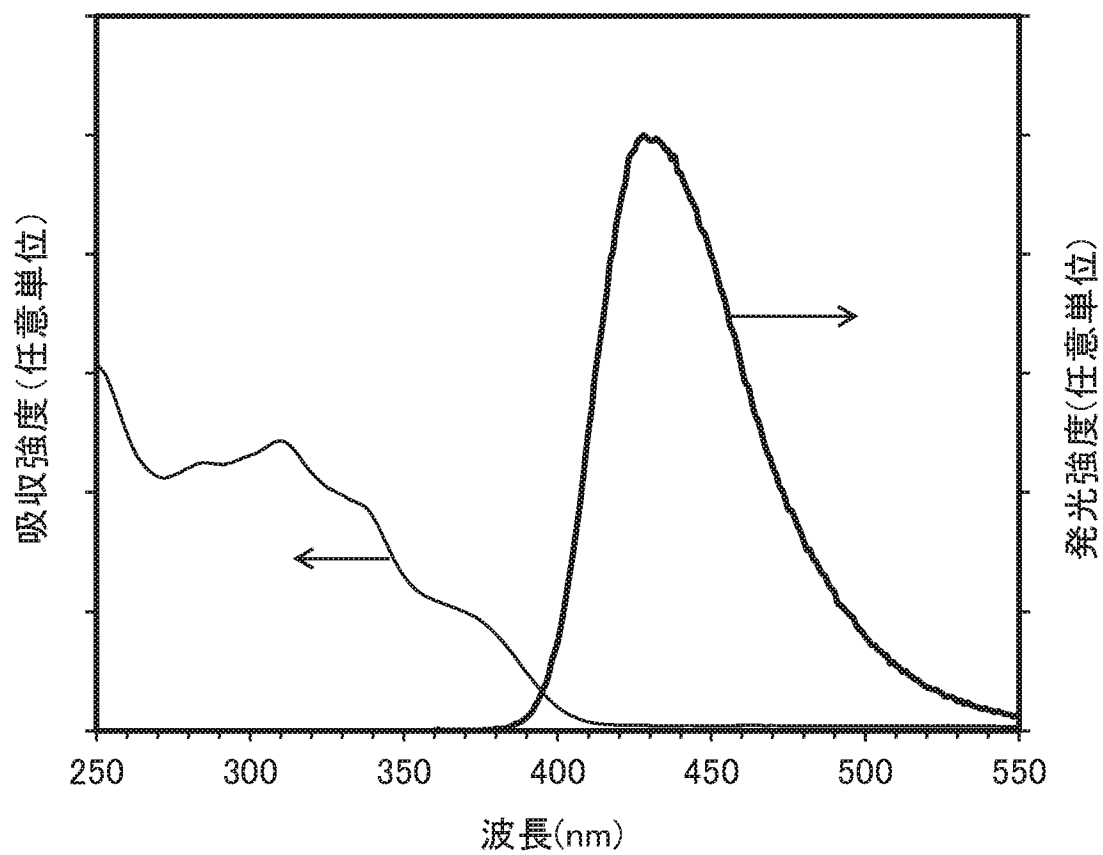


図23A

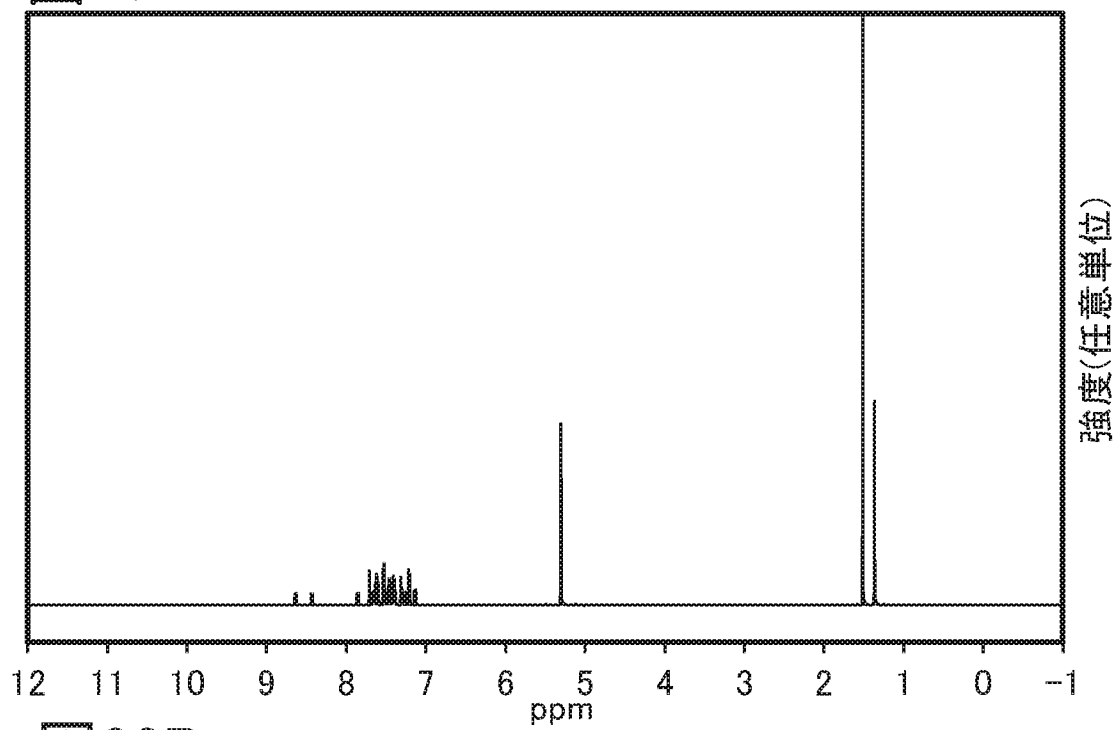


図23B

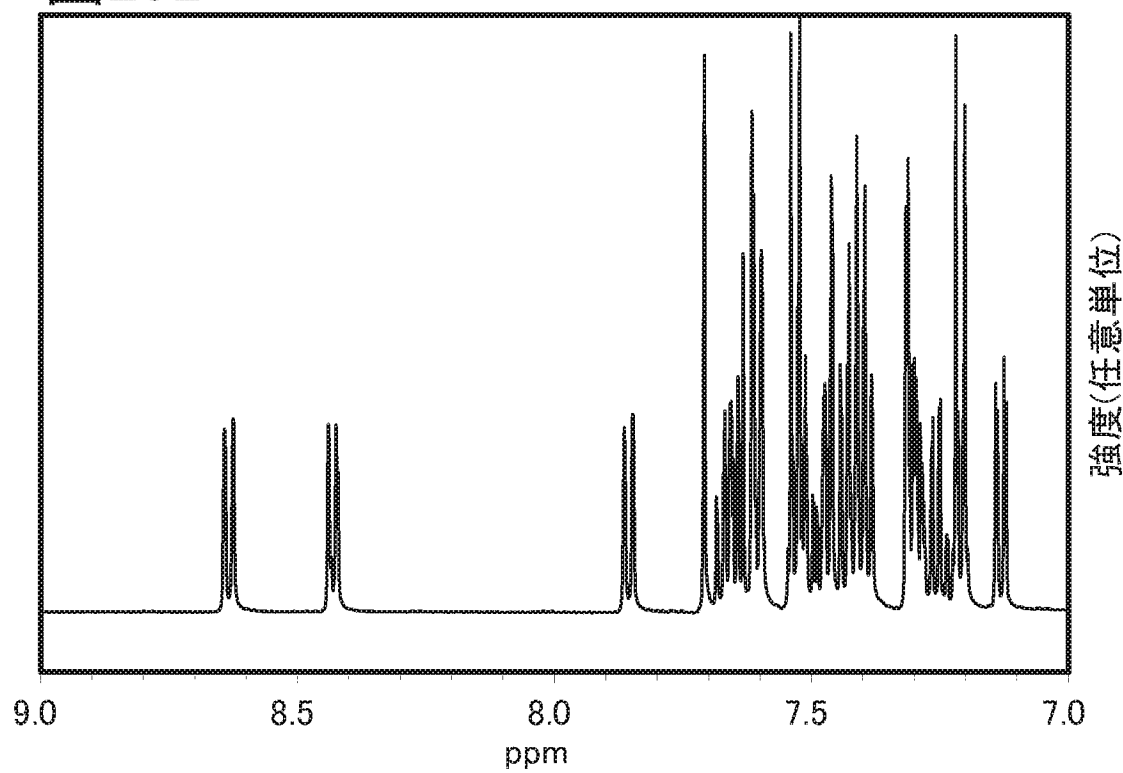


図 24

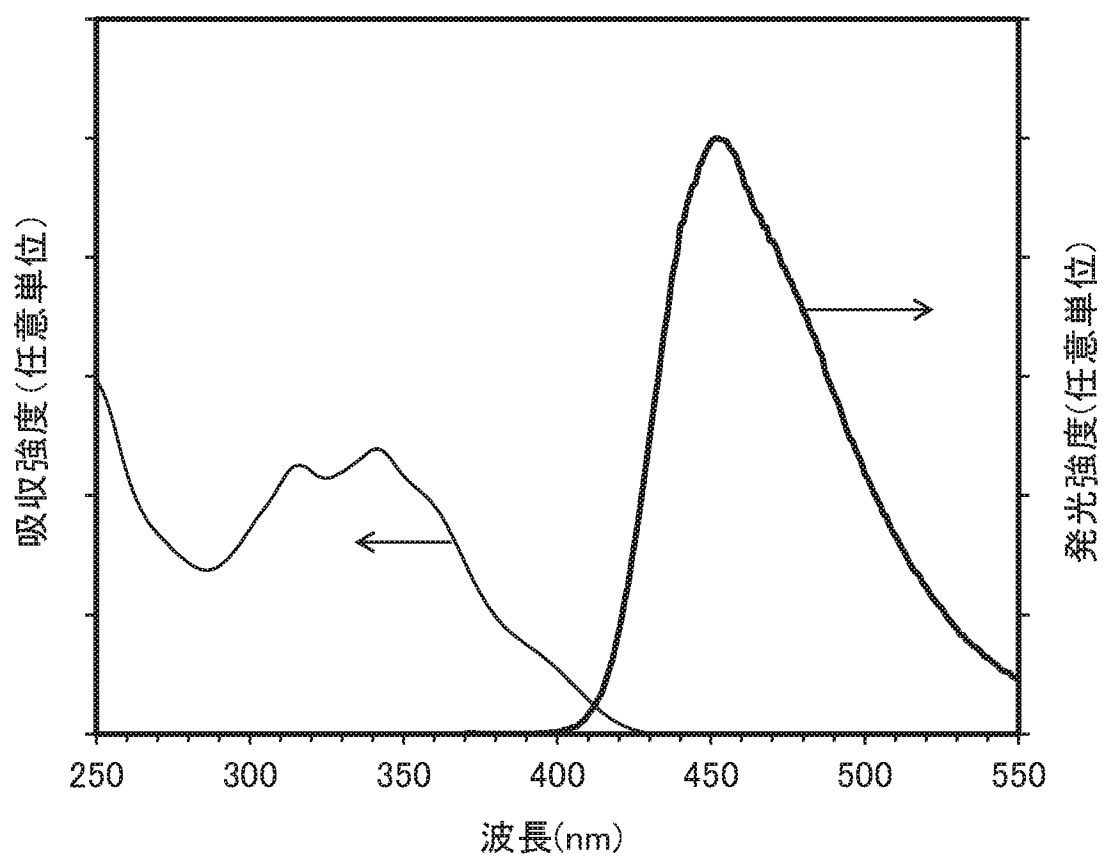


図 25

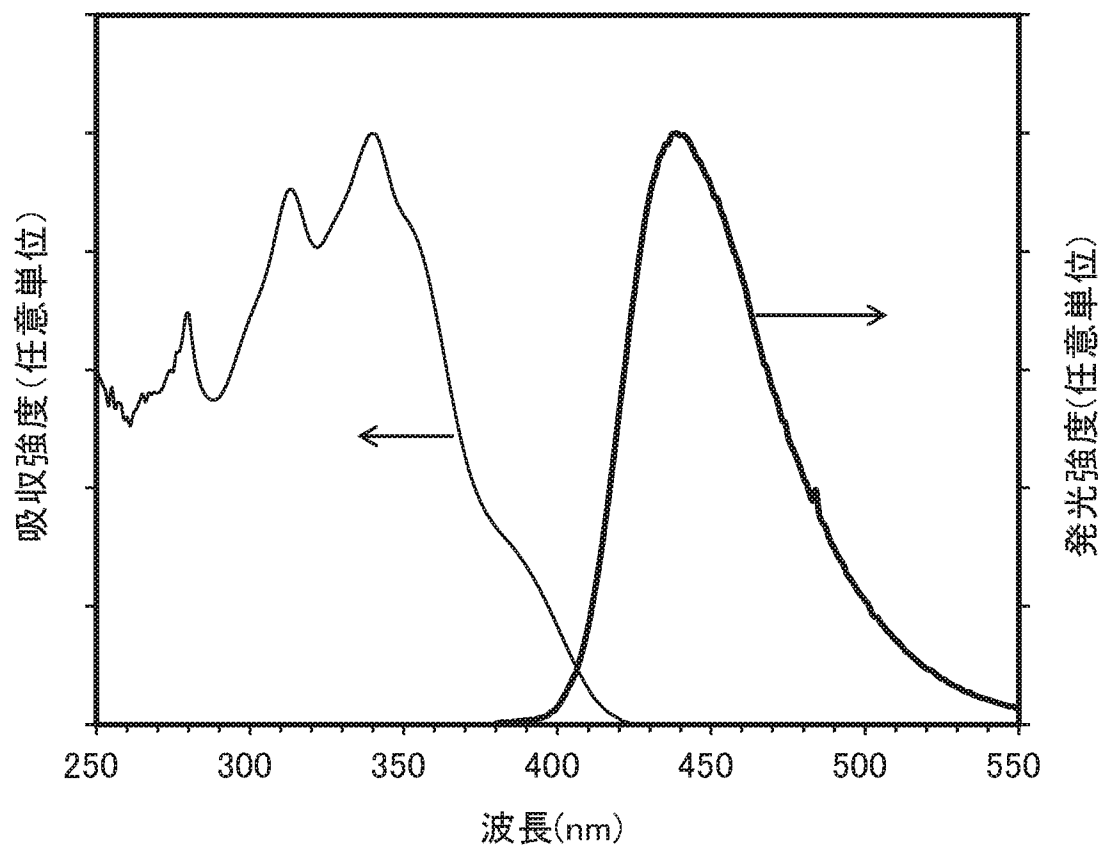


図 26

26/66

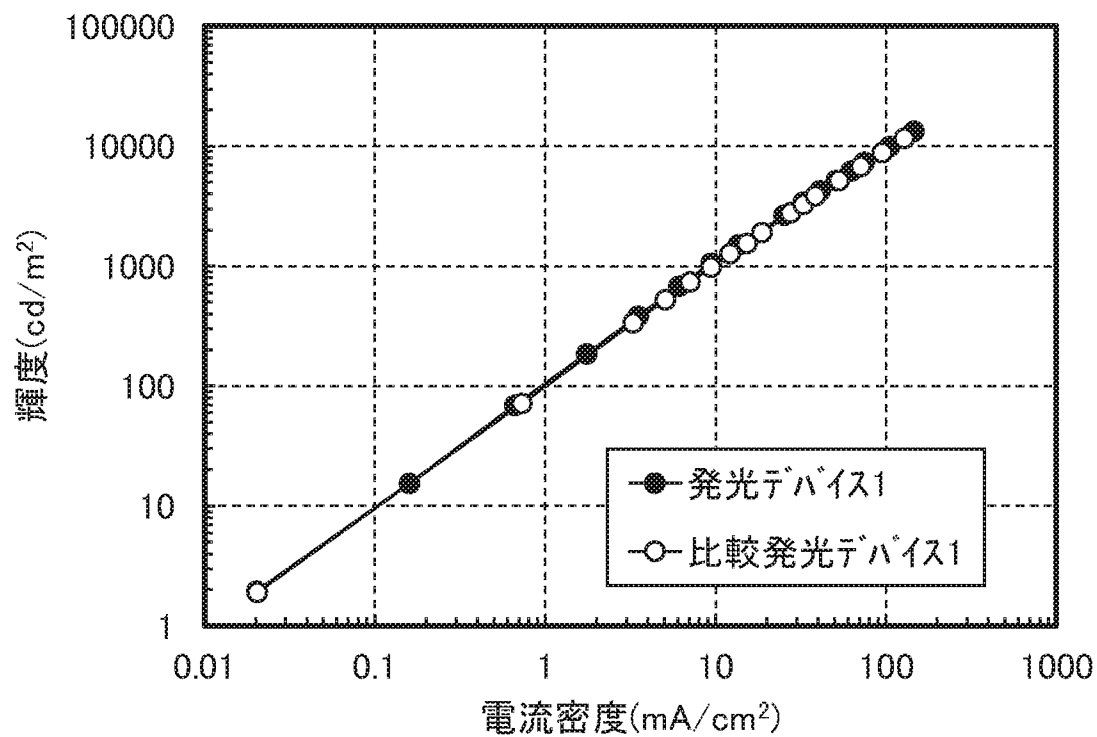


図 27

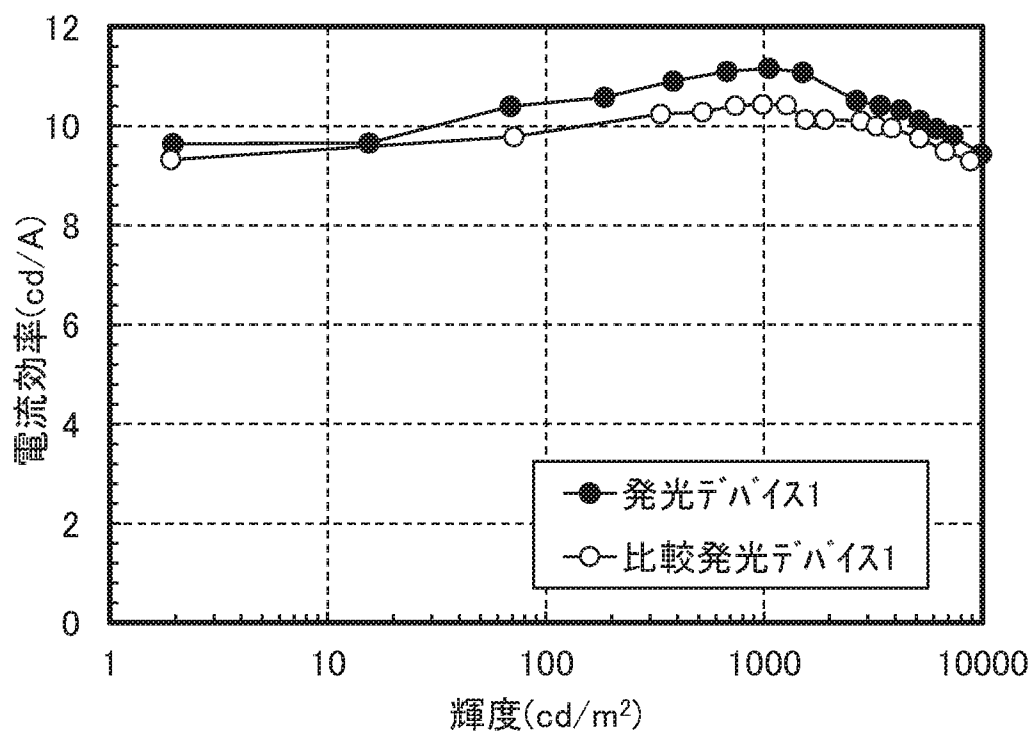


図 28

27/66

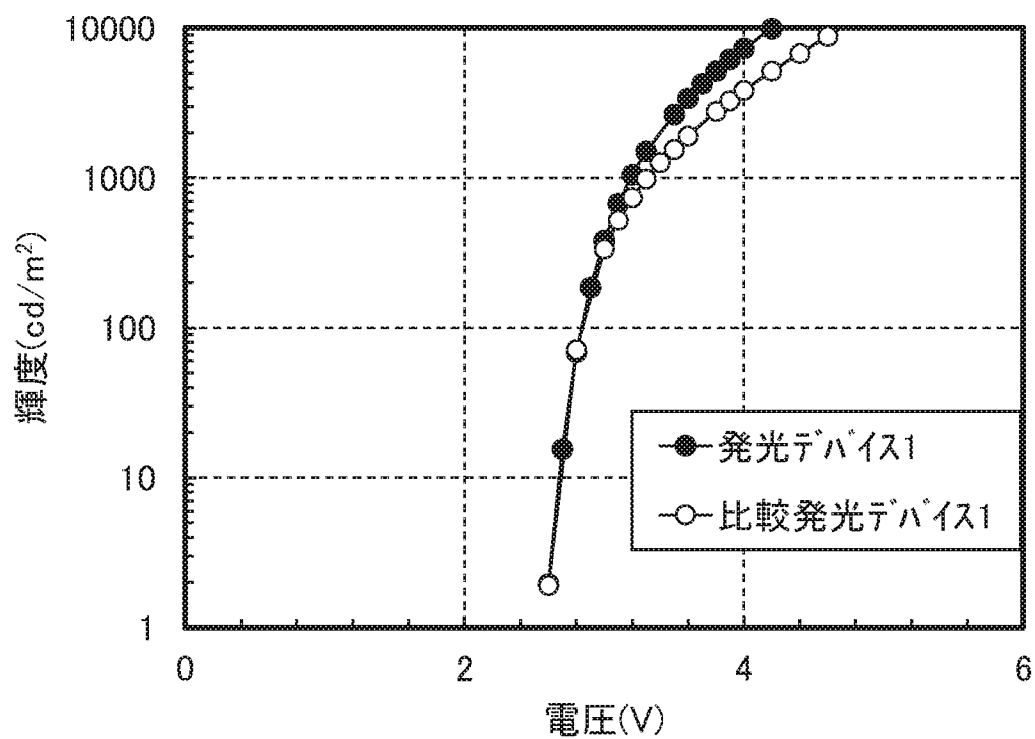


図 29

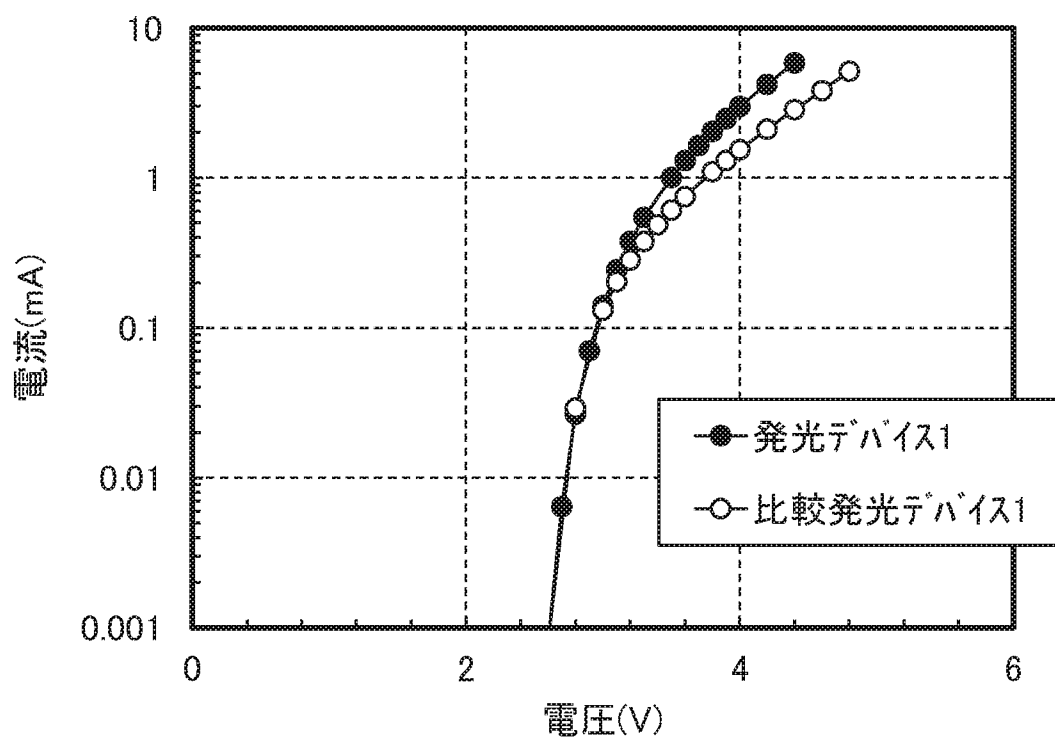


図 30

28/66

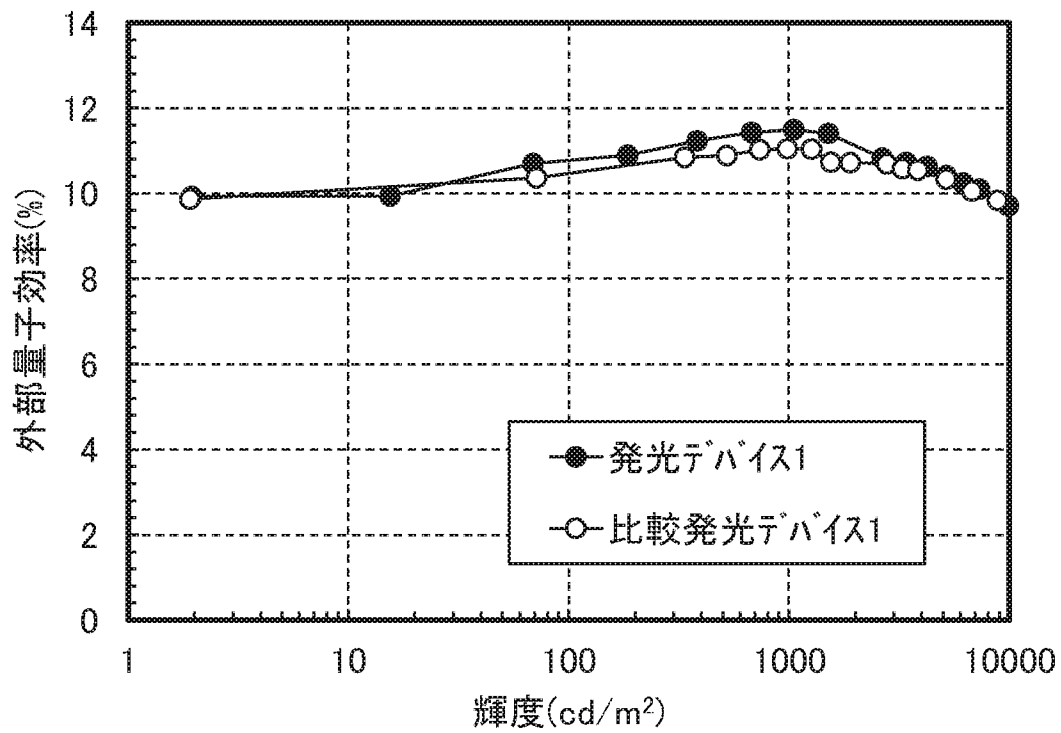


図 31

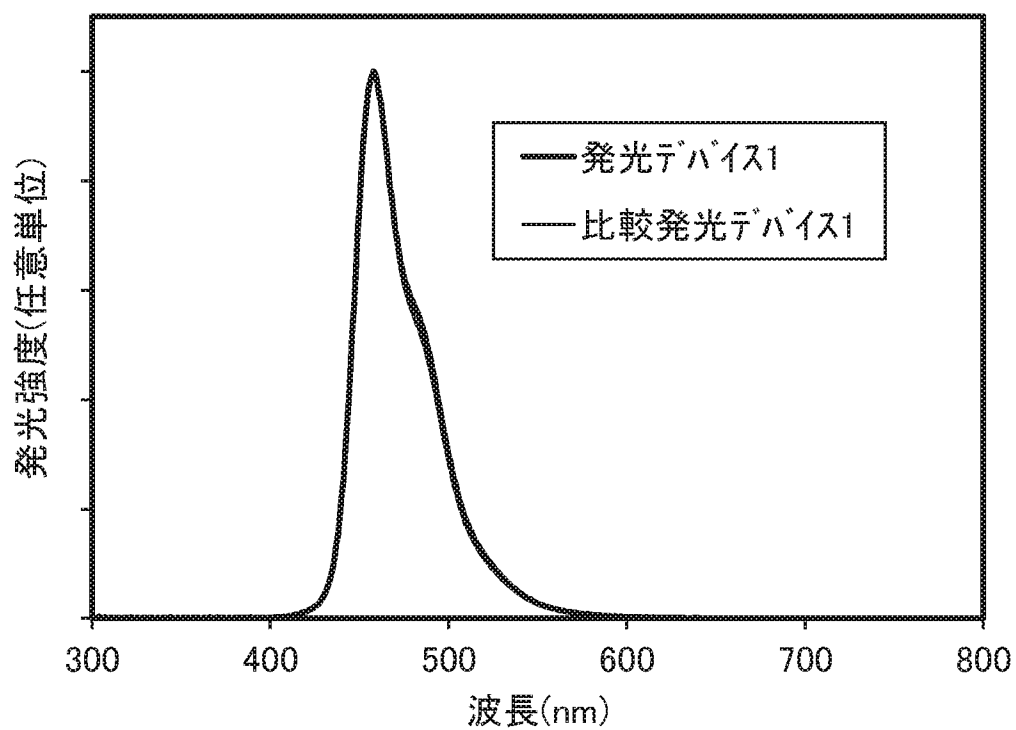


図 32

29/66

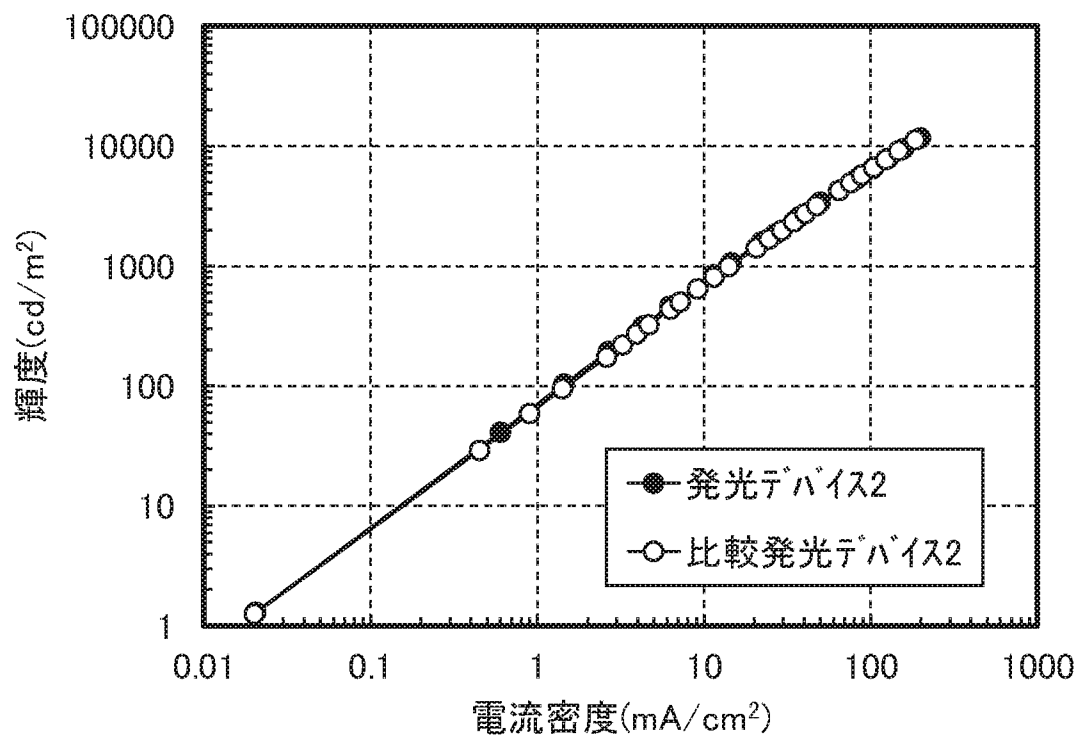


図 33

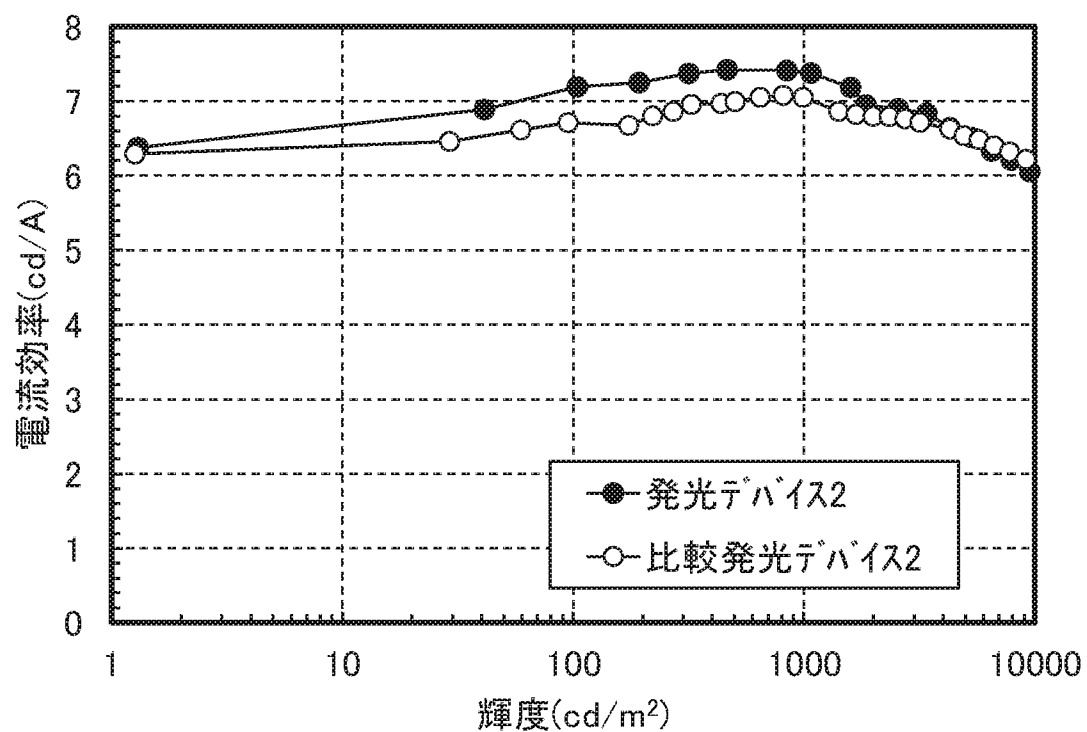


図 34

30/66

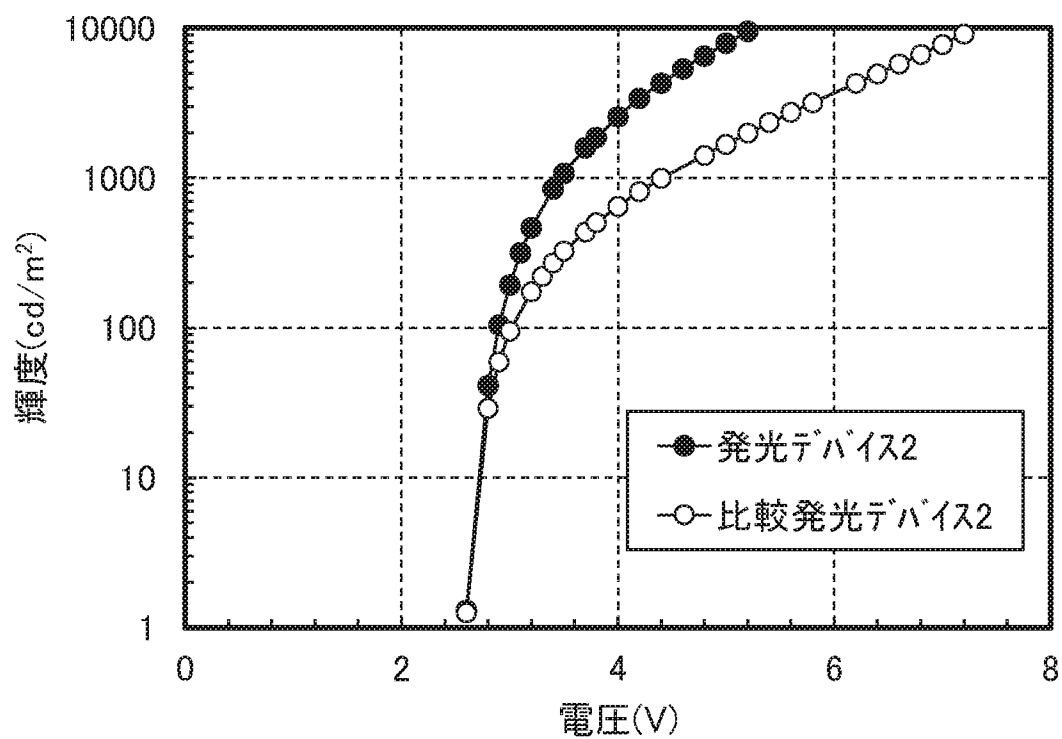


図 35

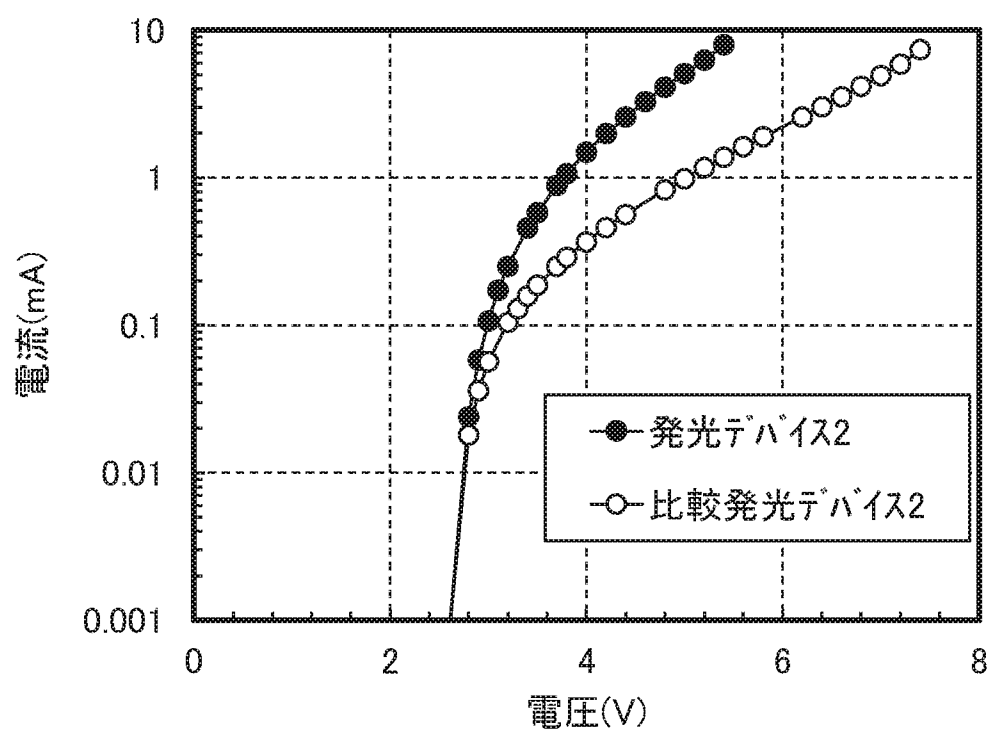


図 36

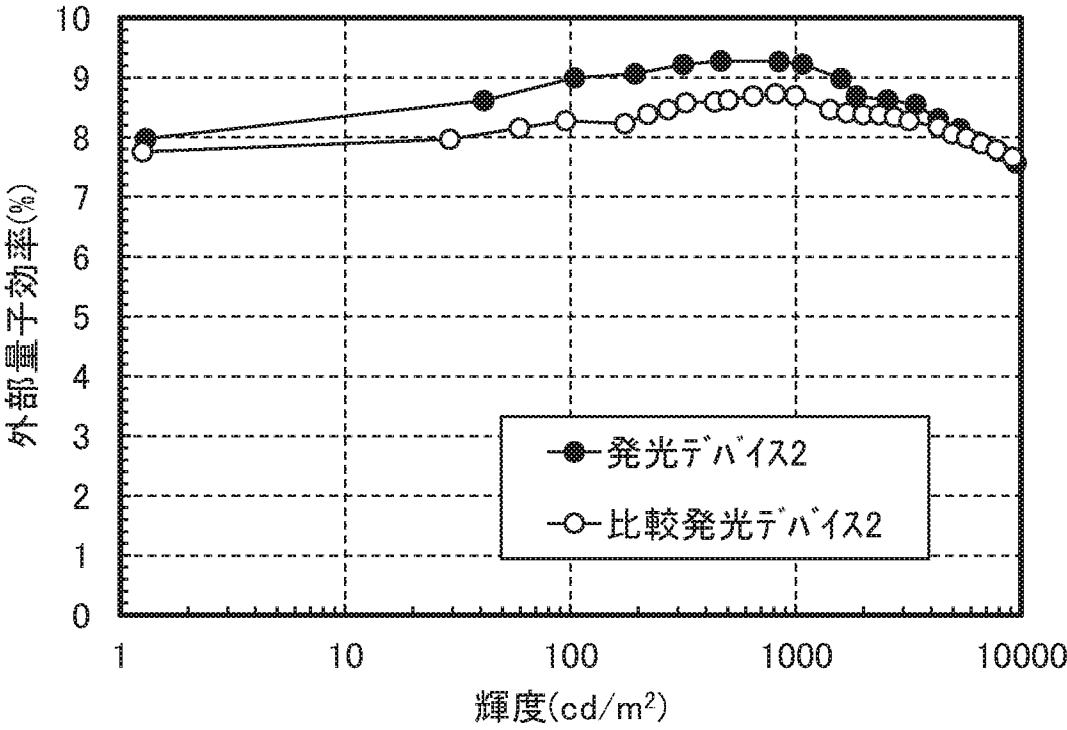


図 37

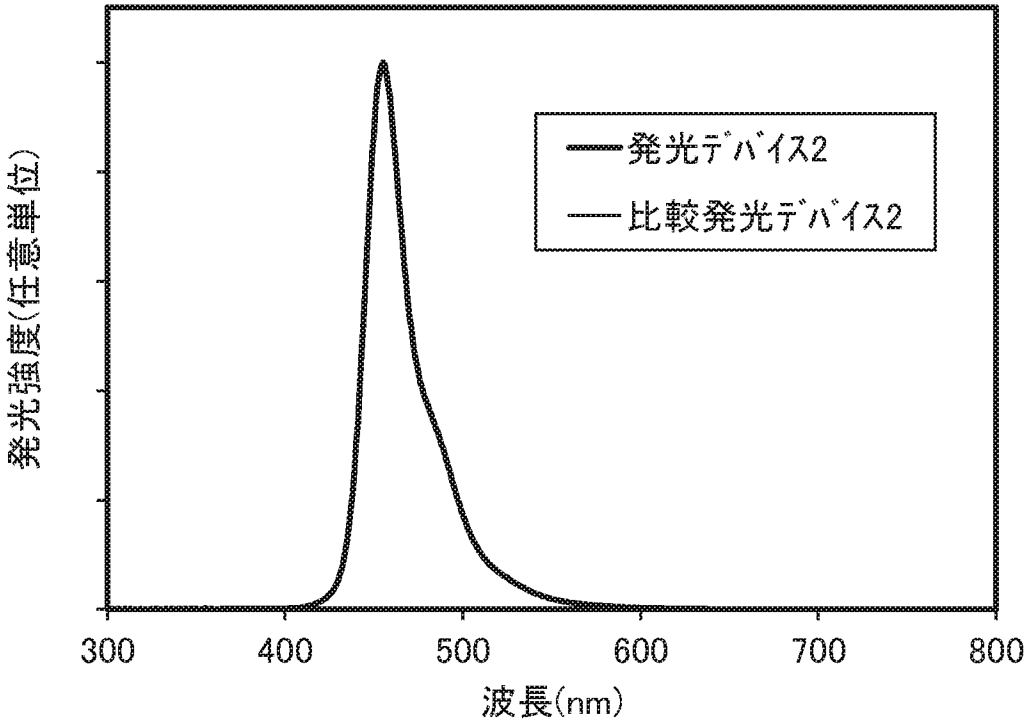


図 38

32/66

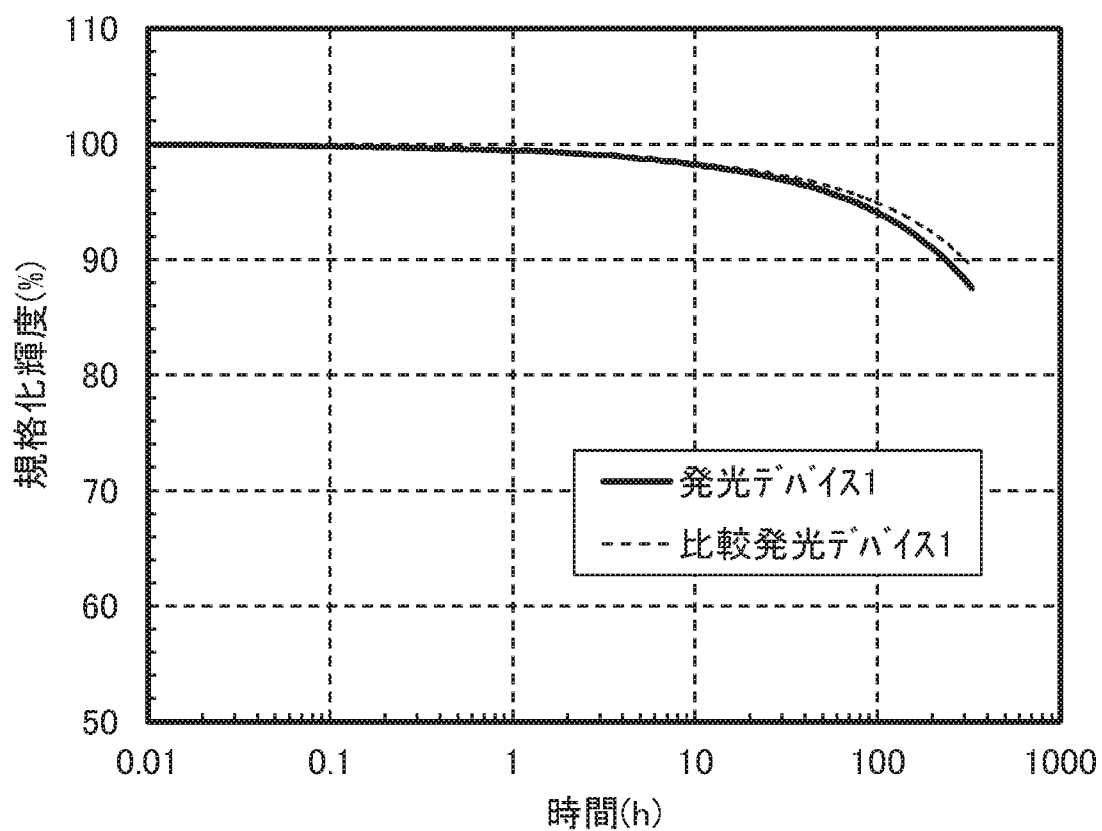


図 39

33/66

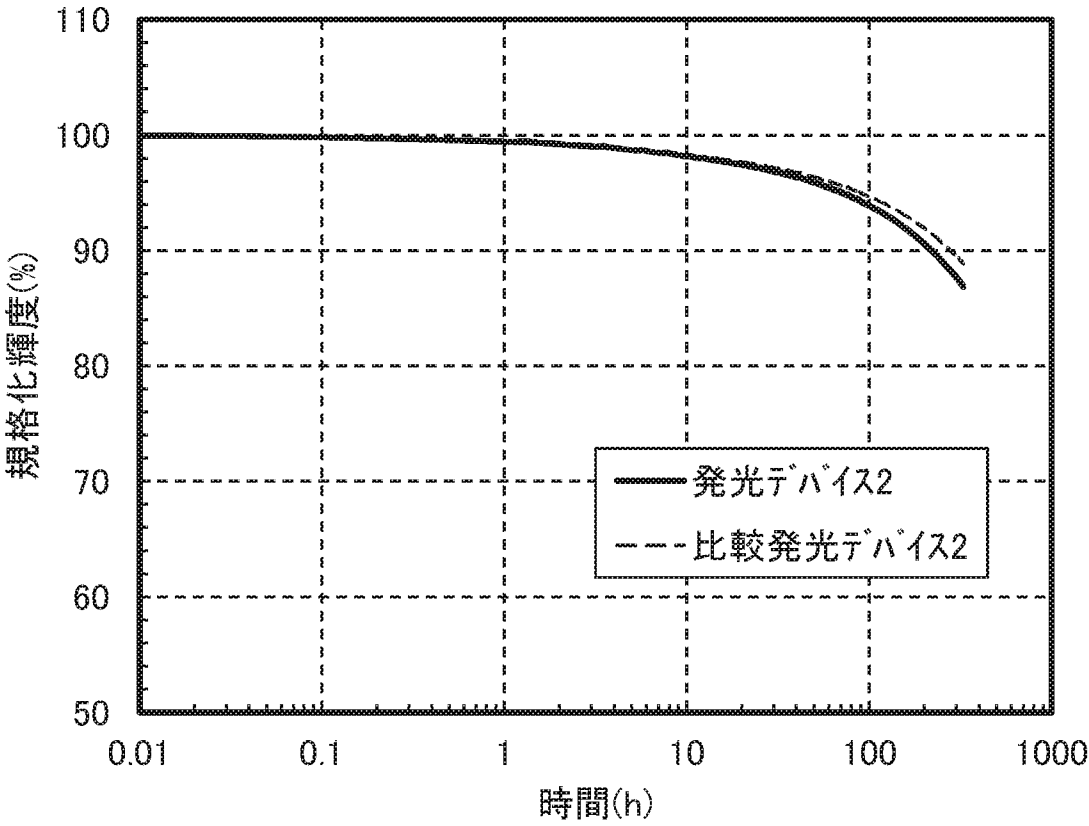


図 40

34/66

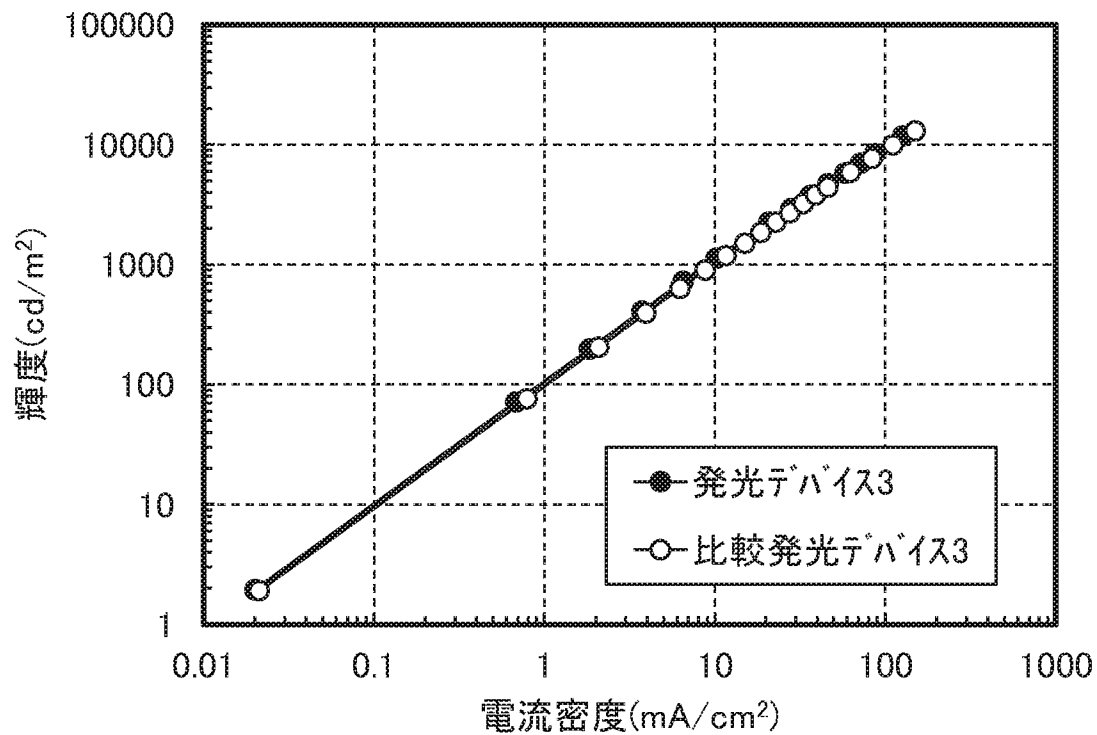


図 41

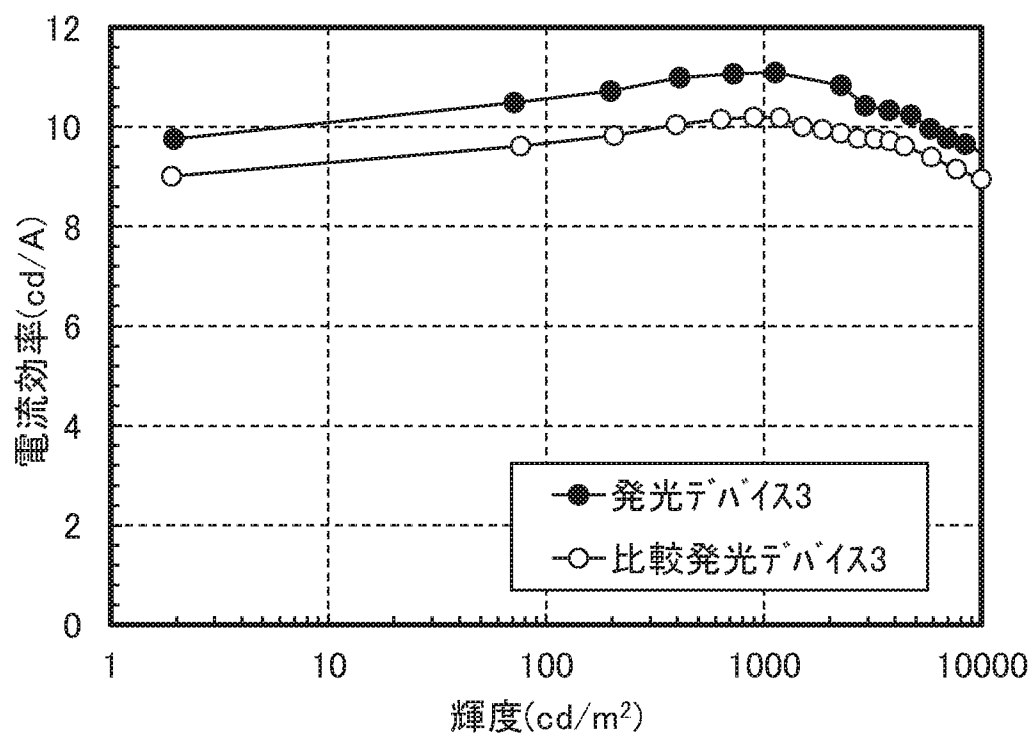


図 42

35/66

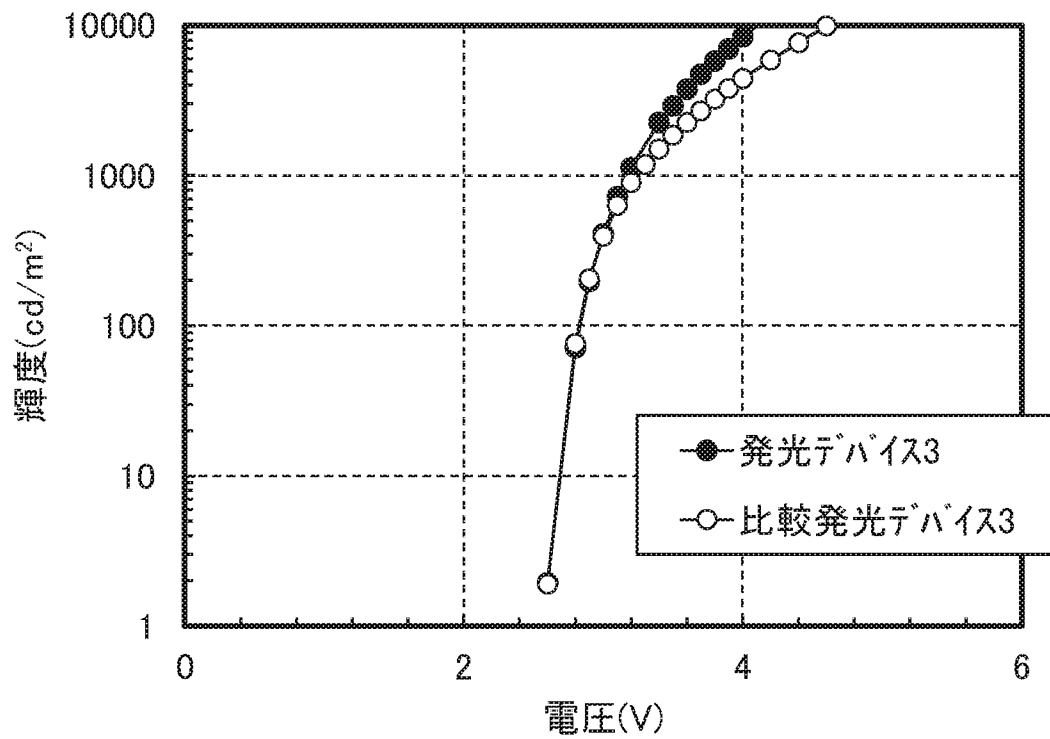
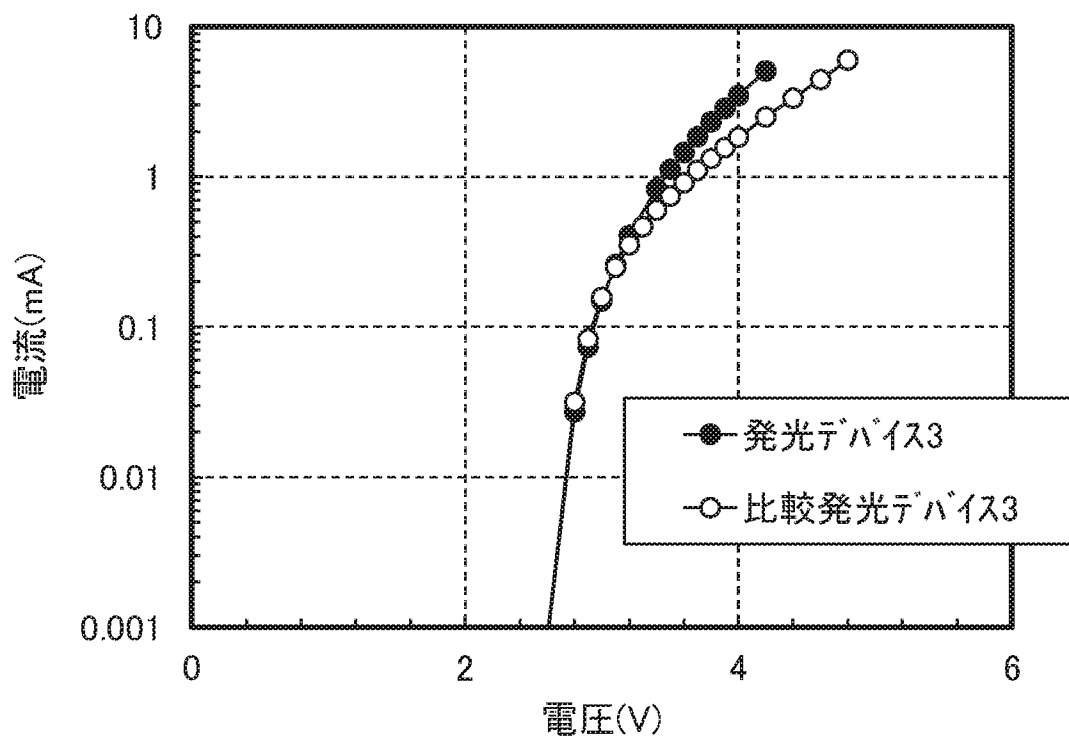


図 43



発光デバイス3

図 44

36/66

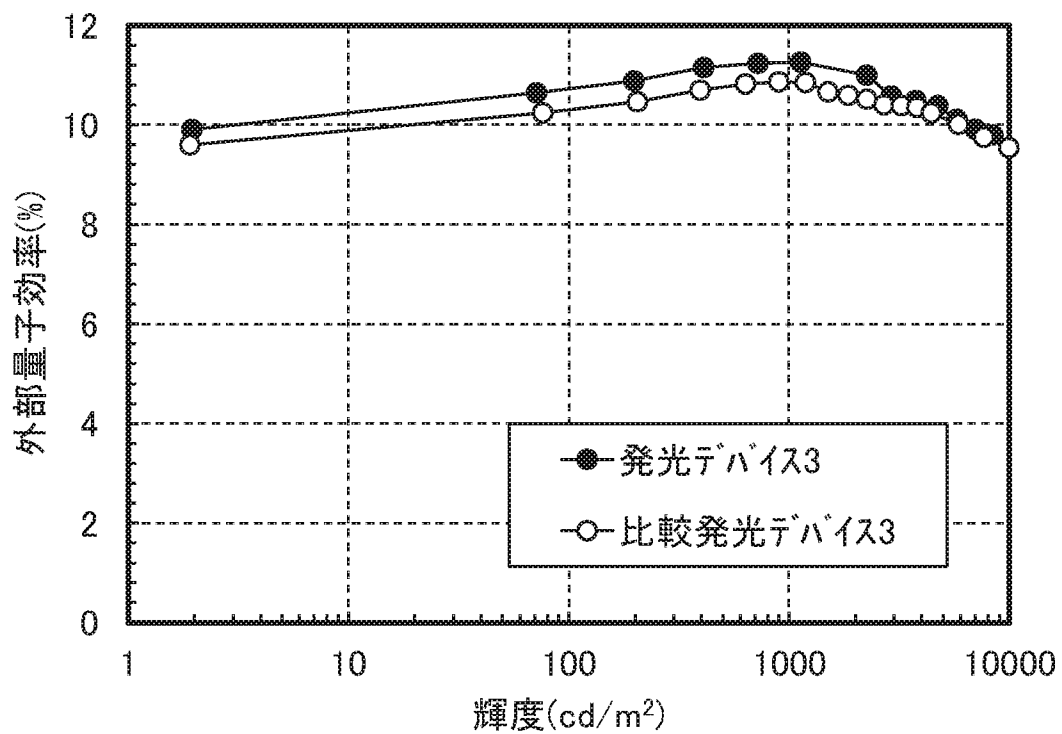


図 45

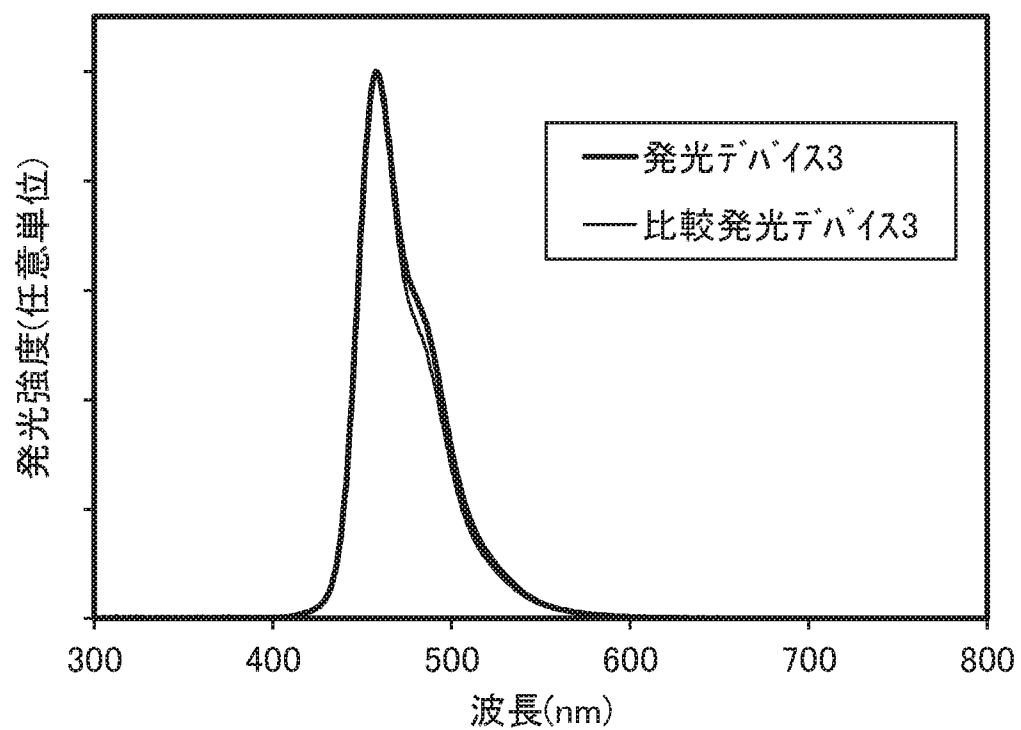


図 46

37/66

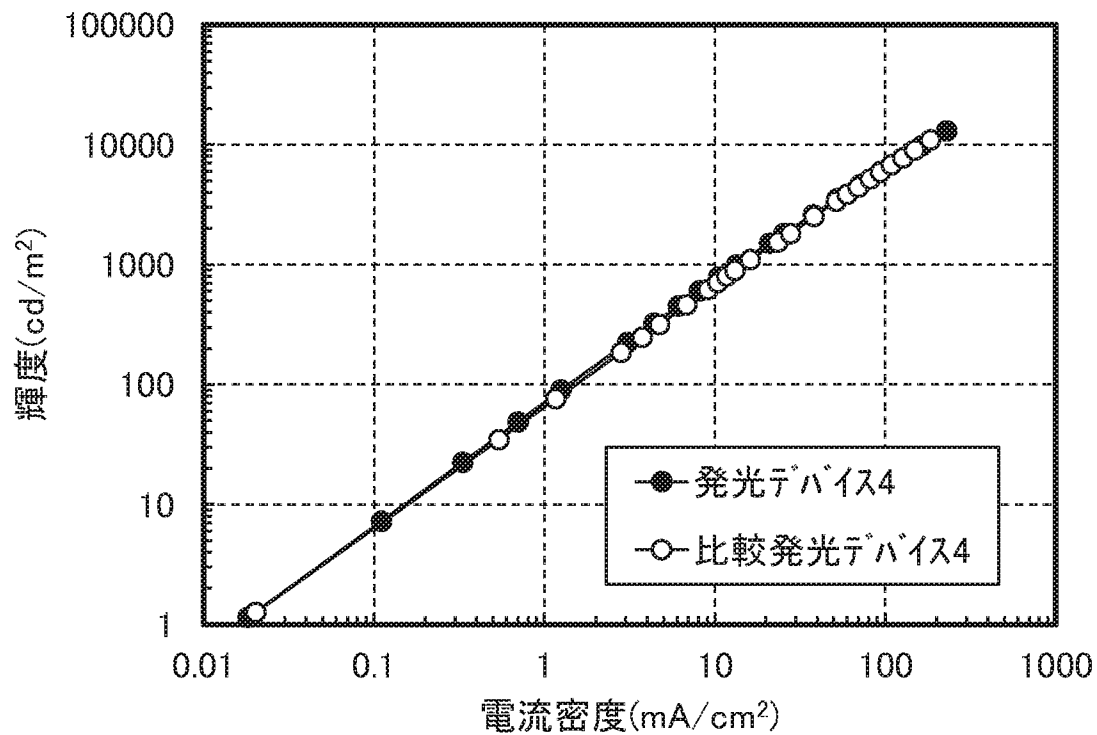


図 47

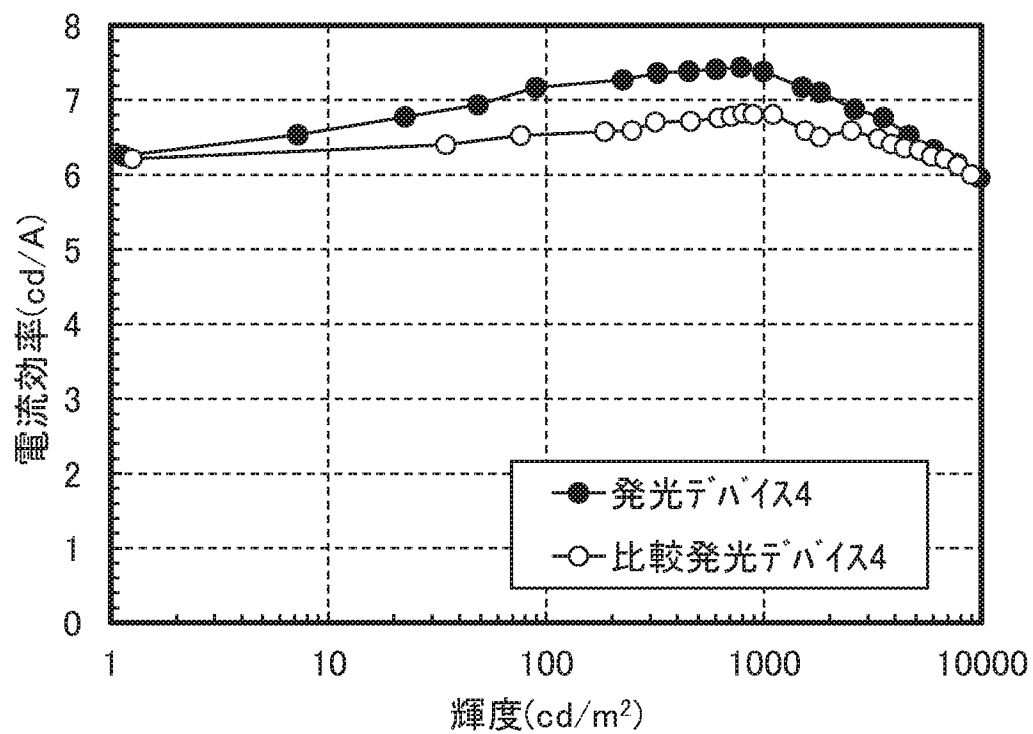


図 48

38/66

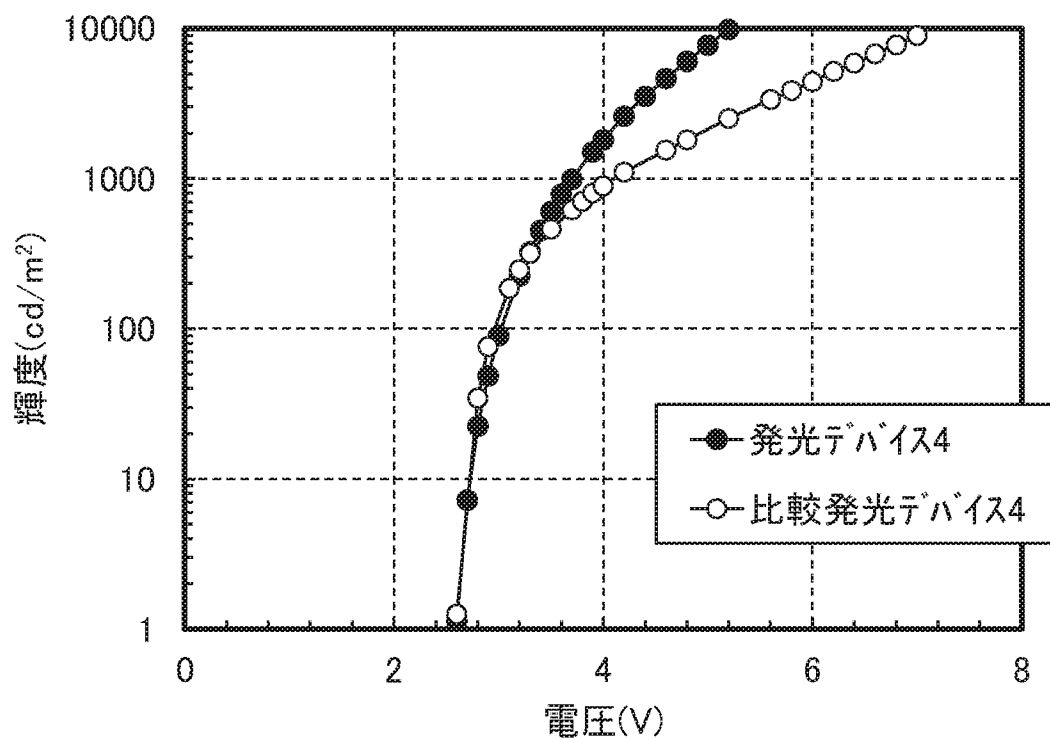


図 49

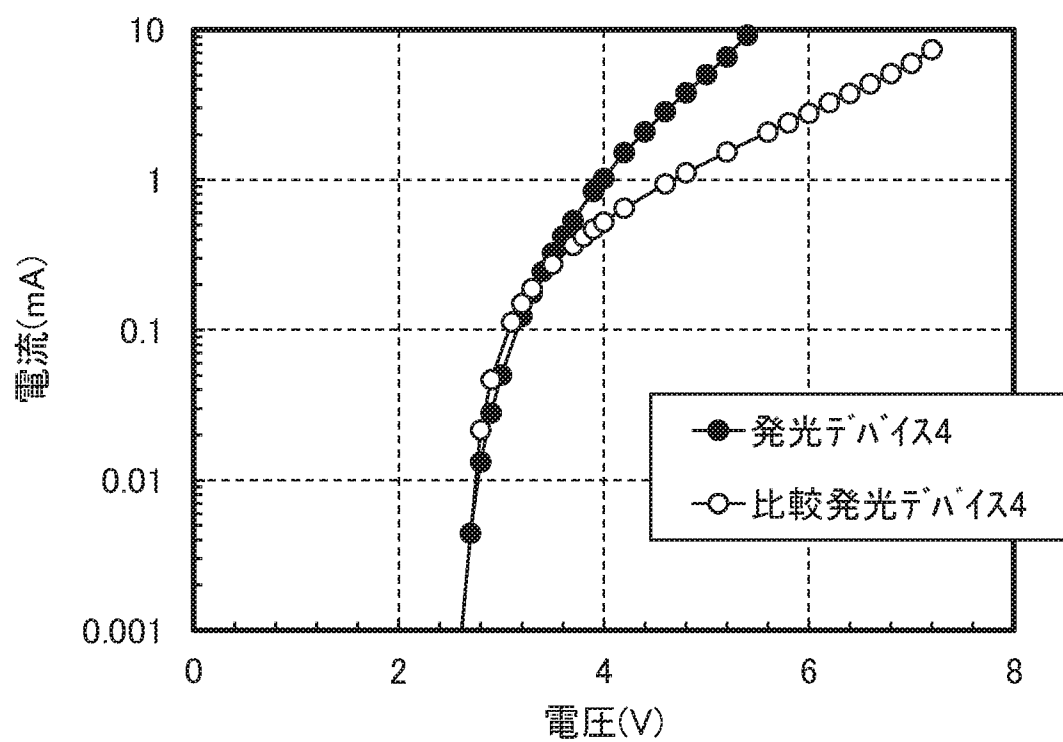


図 50

39/66

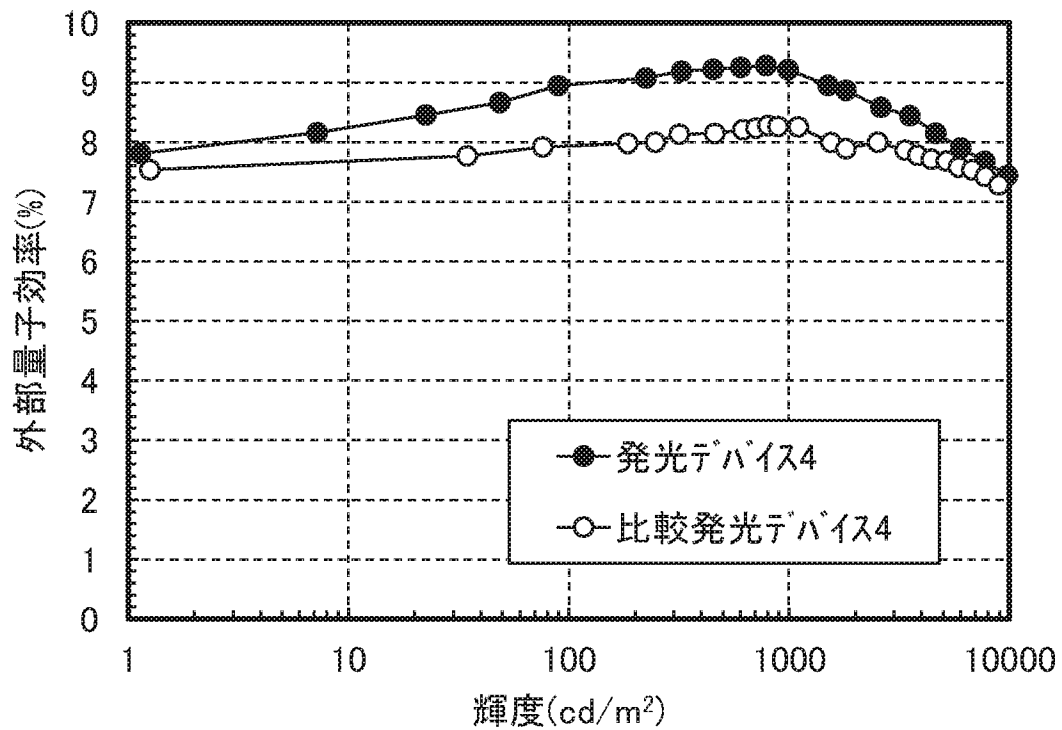


図 51

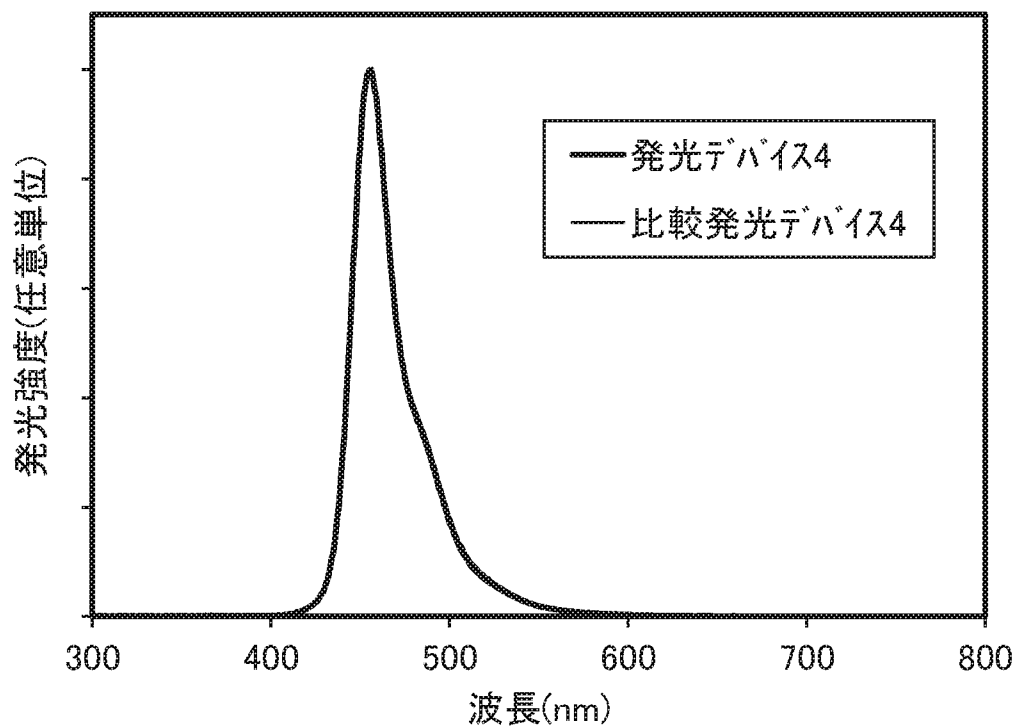


図 52

40/66

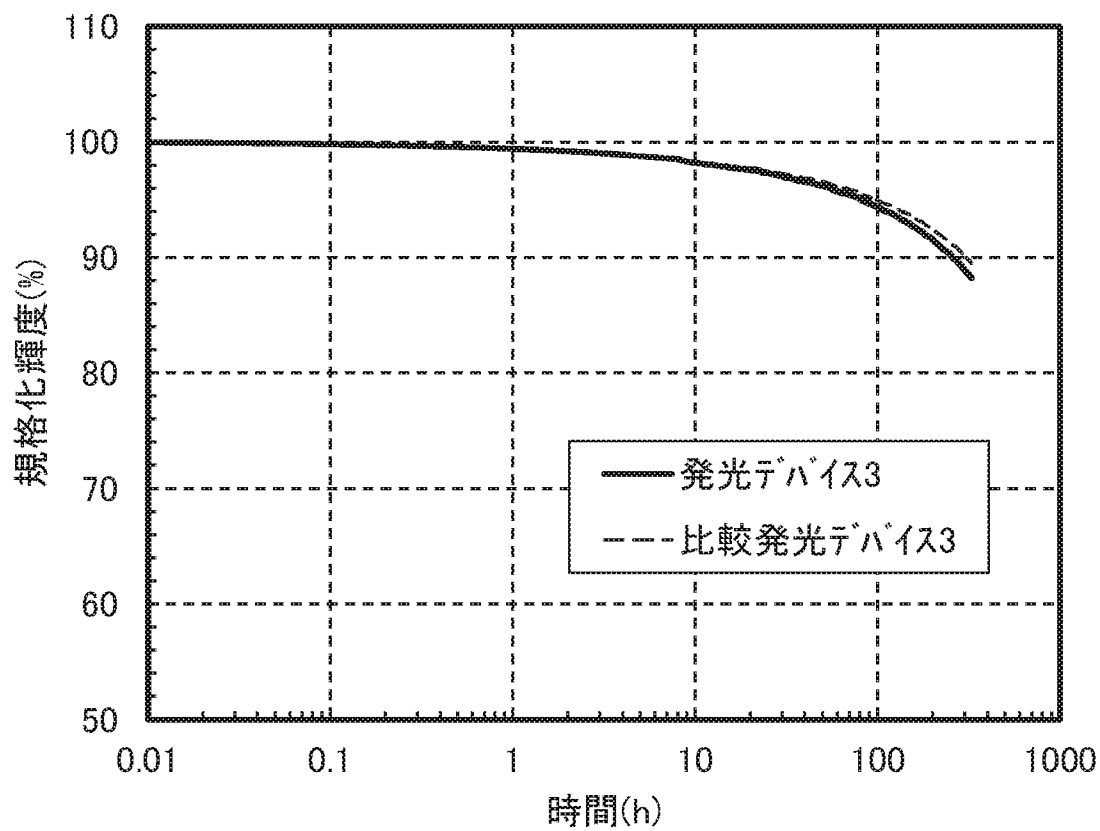


図 53

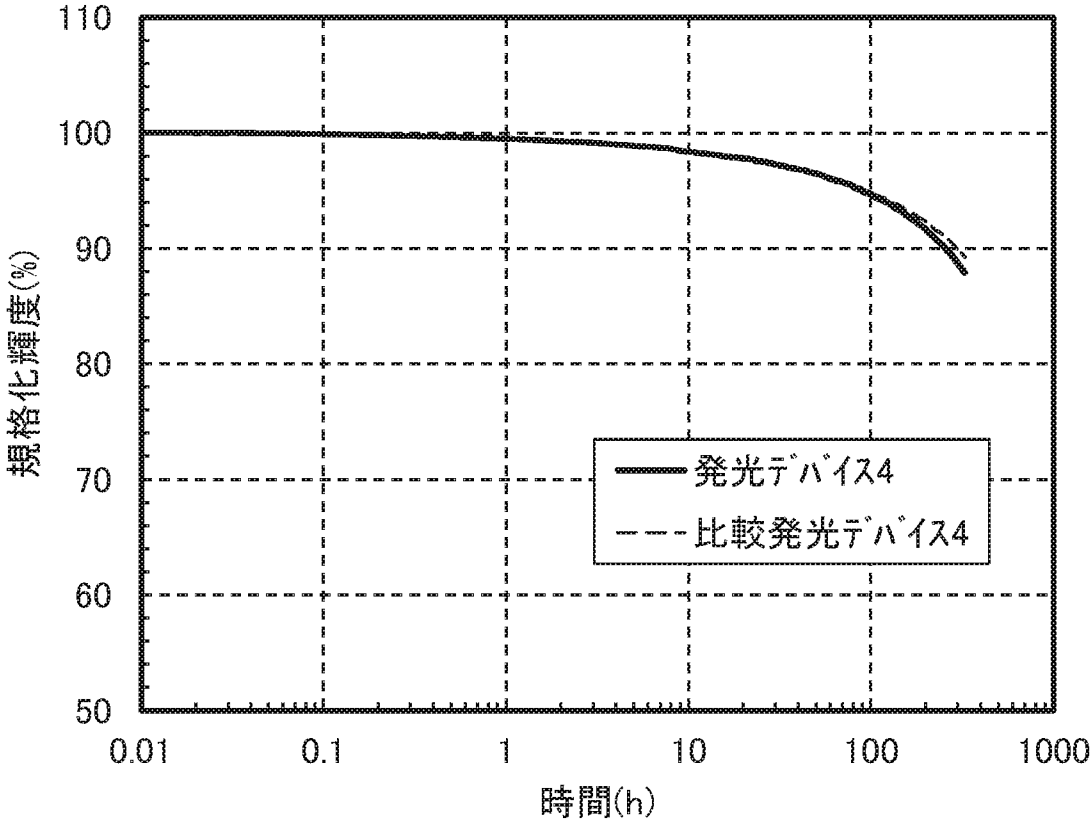


図 54

42/66

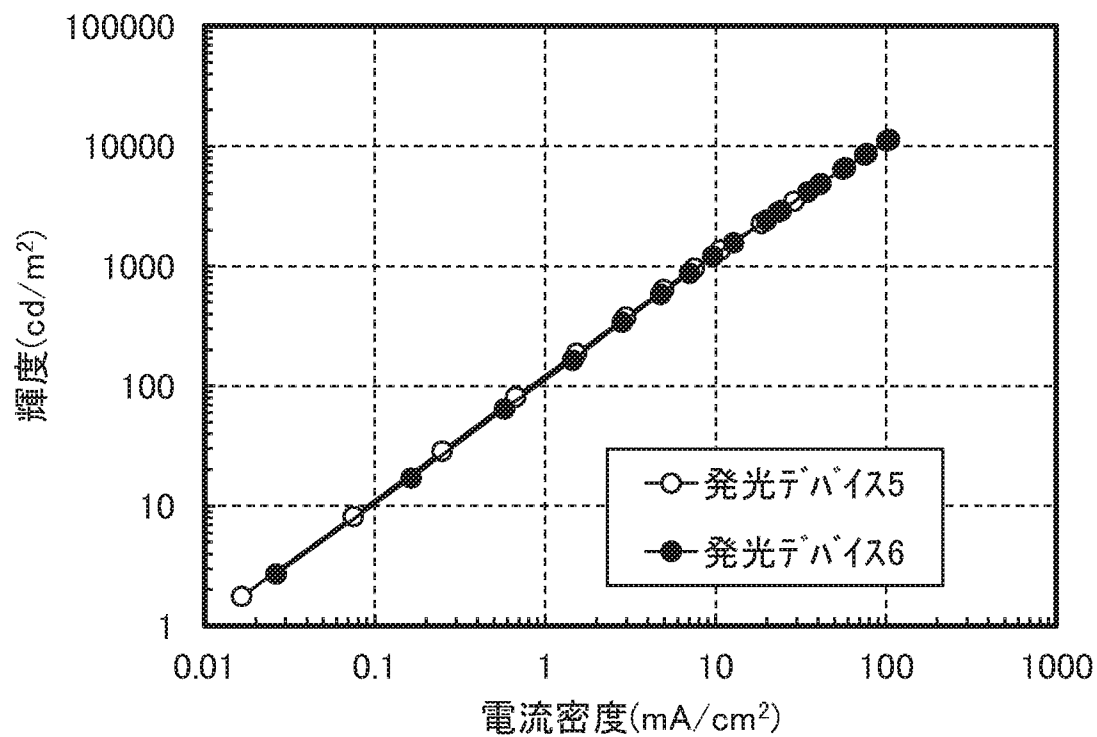


図 55

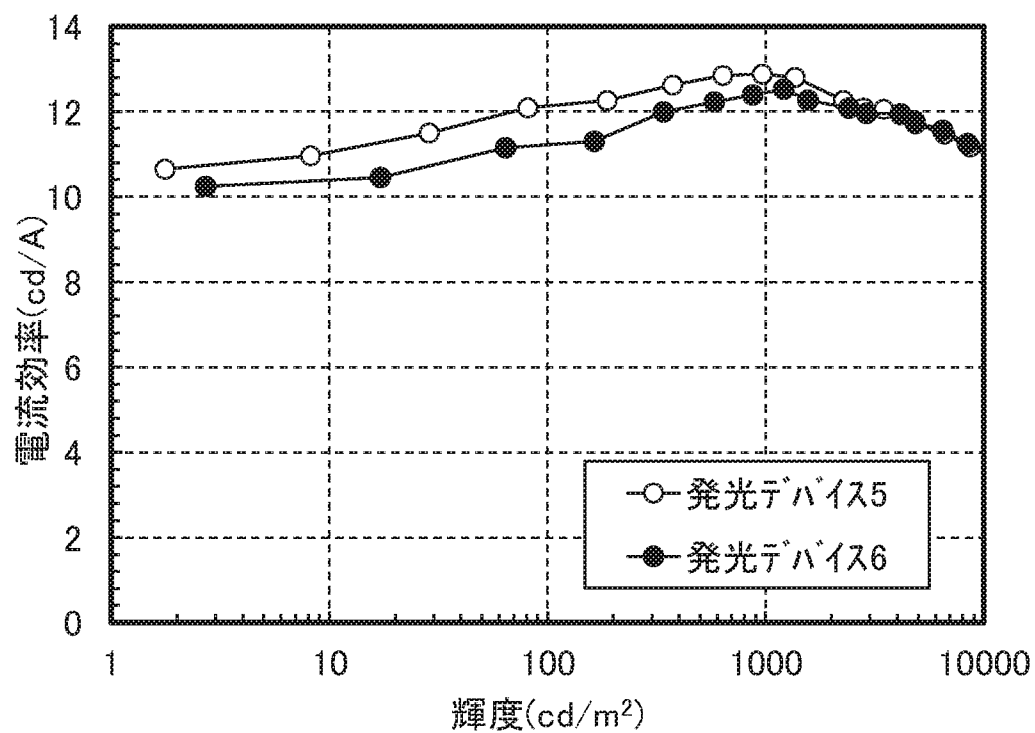


図 56

43/66

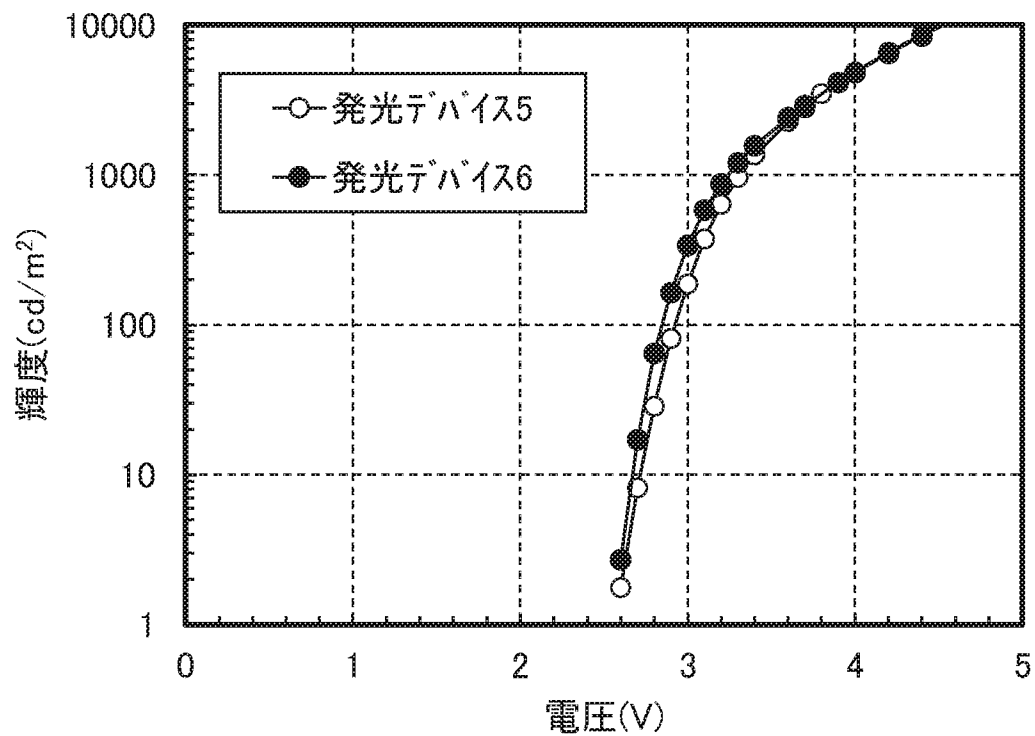


図 57

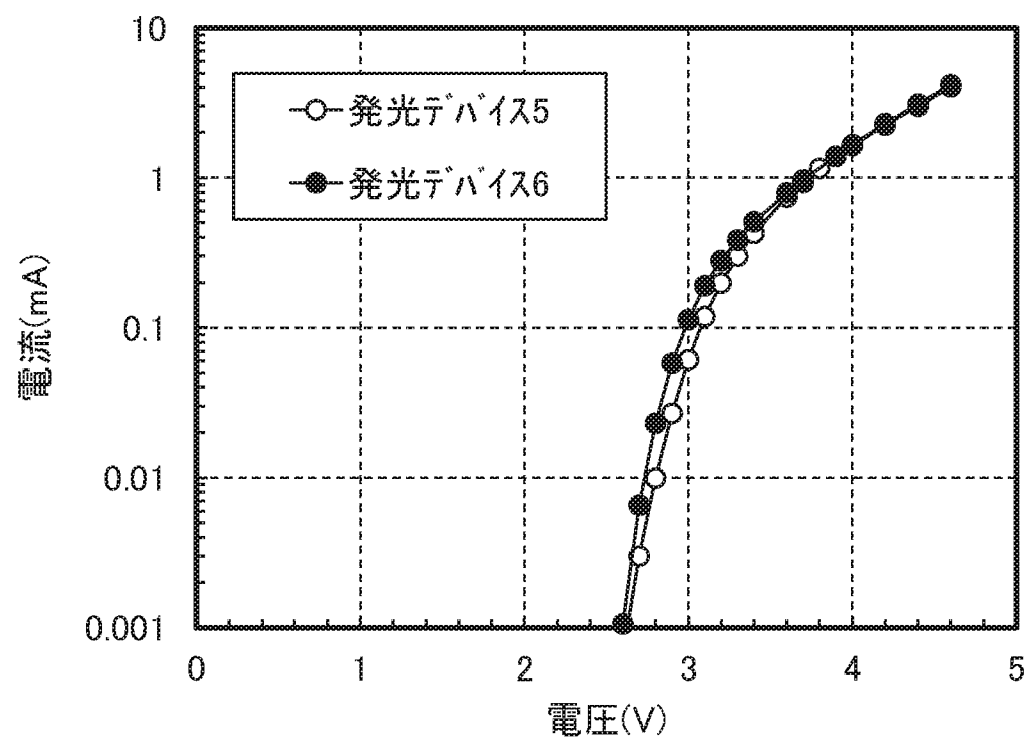


図 58

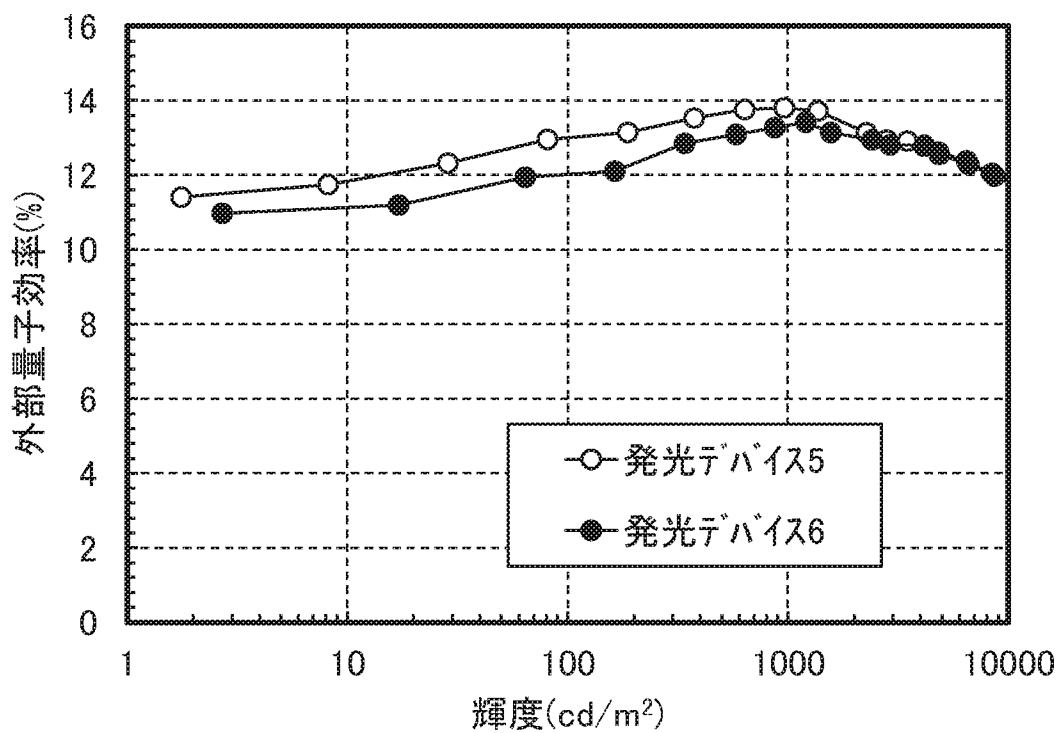


図 59

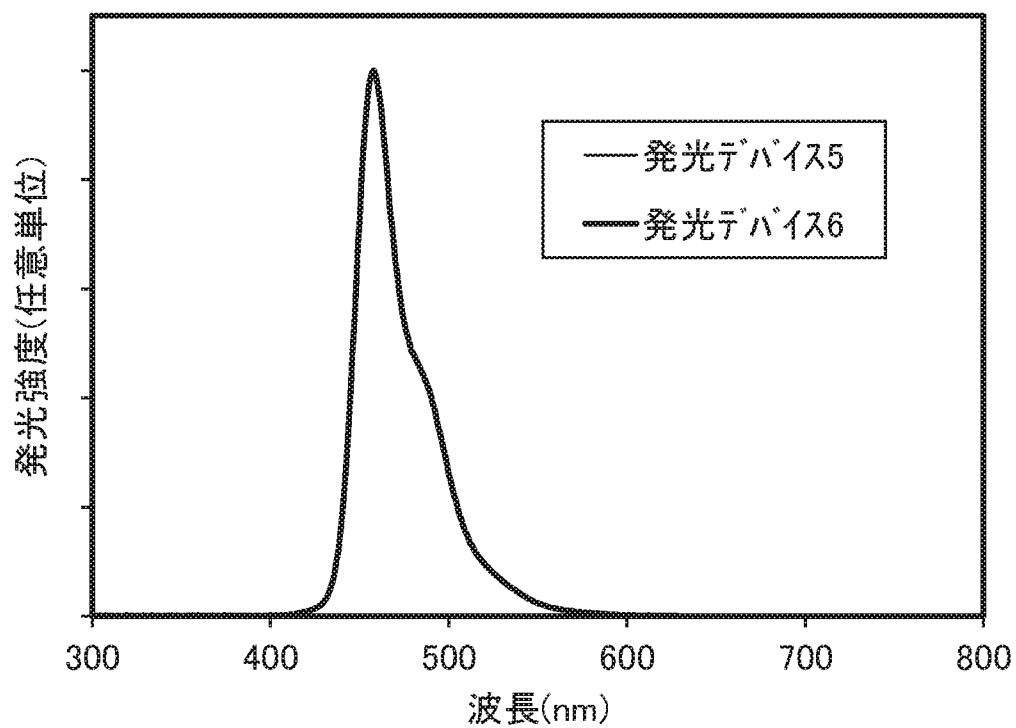


図60A

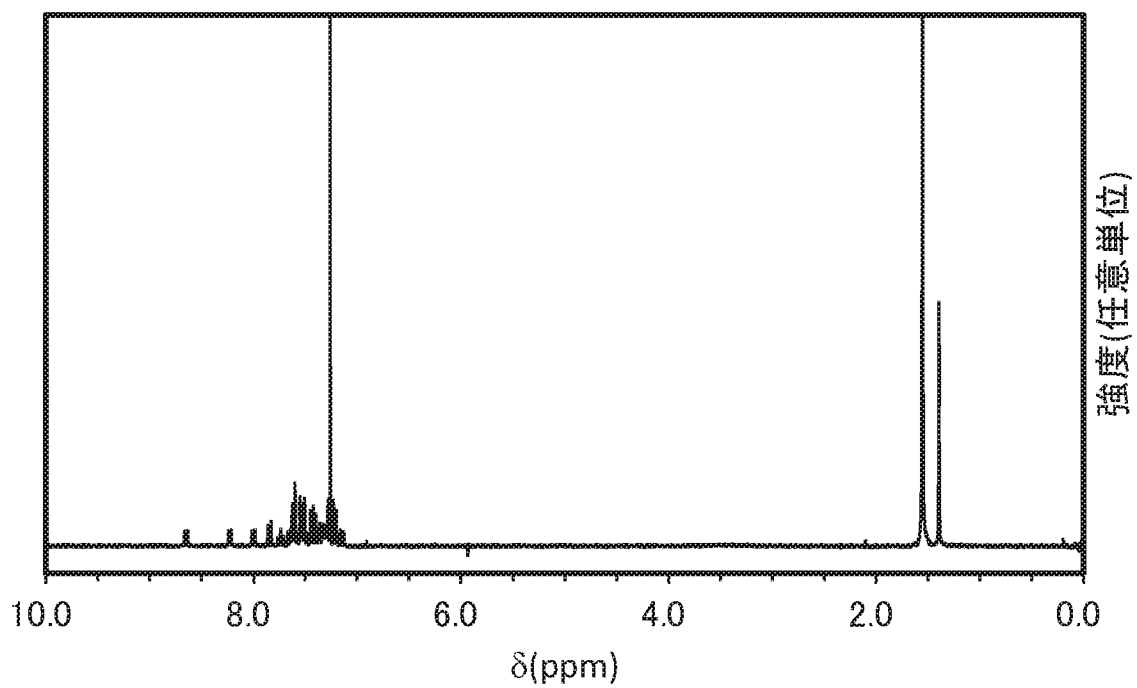


図60B

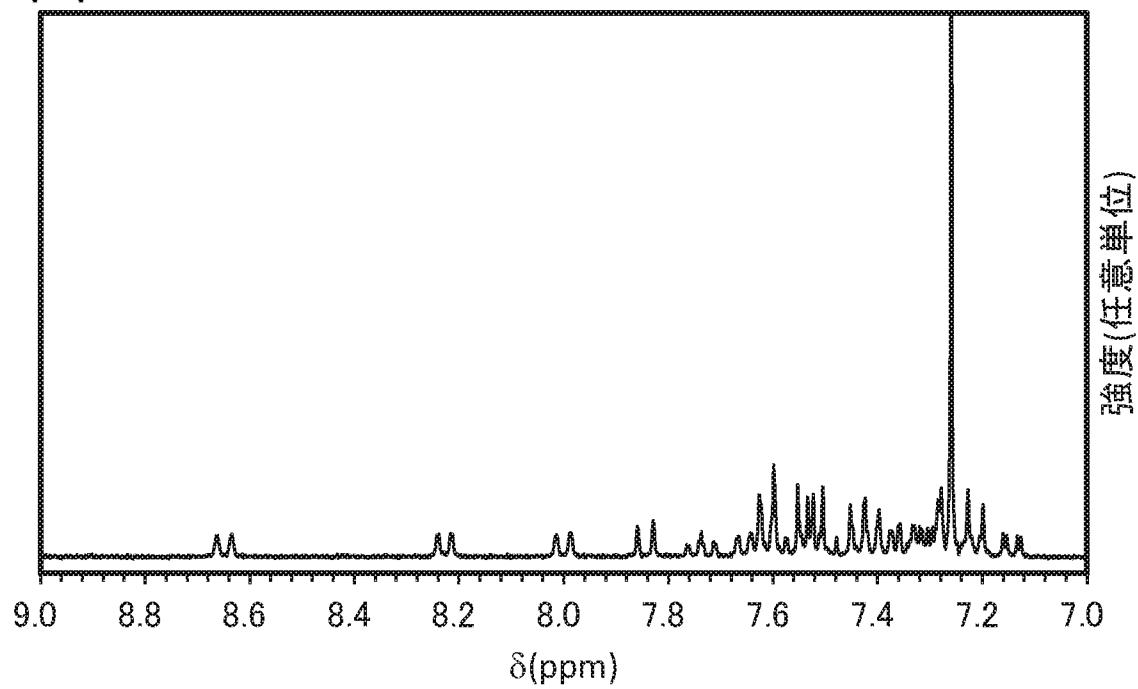


図 61

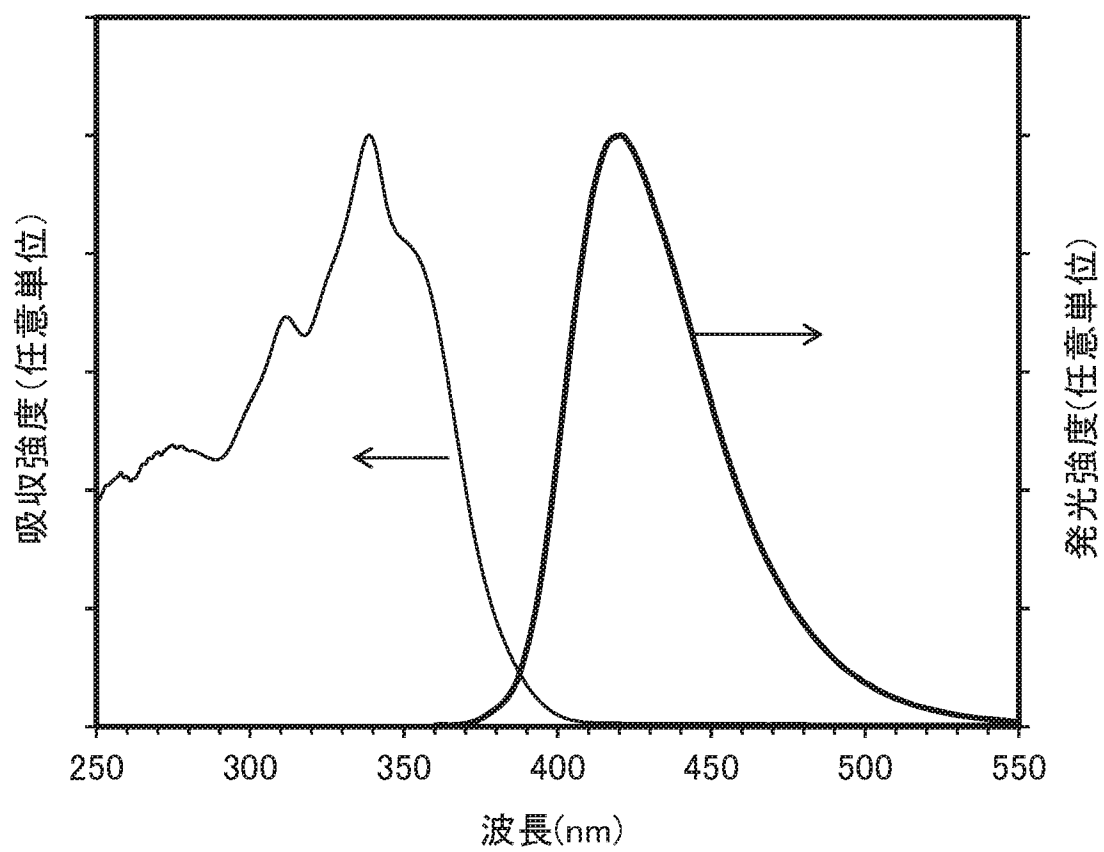


図 62

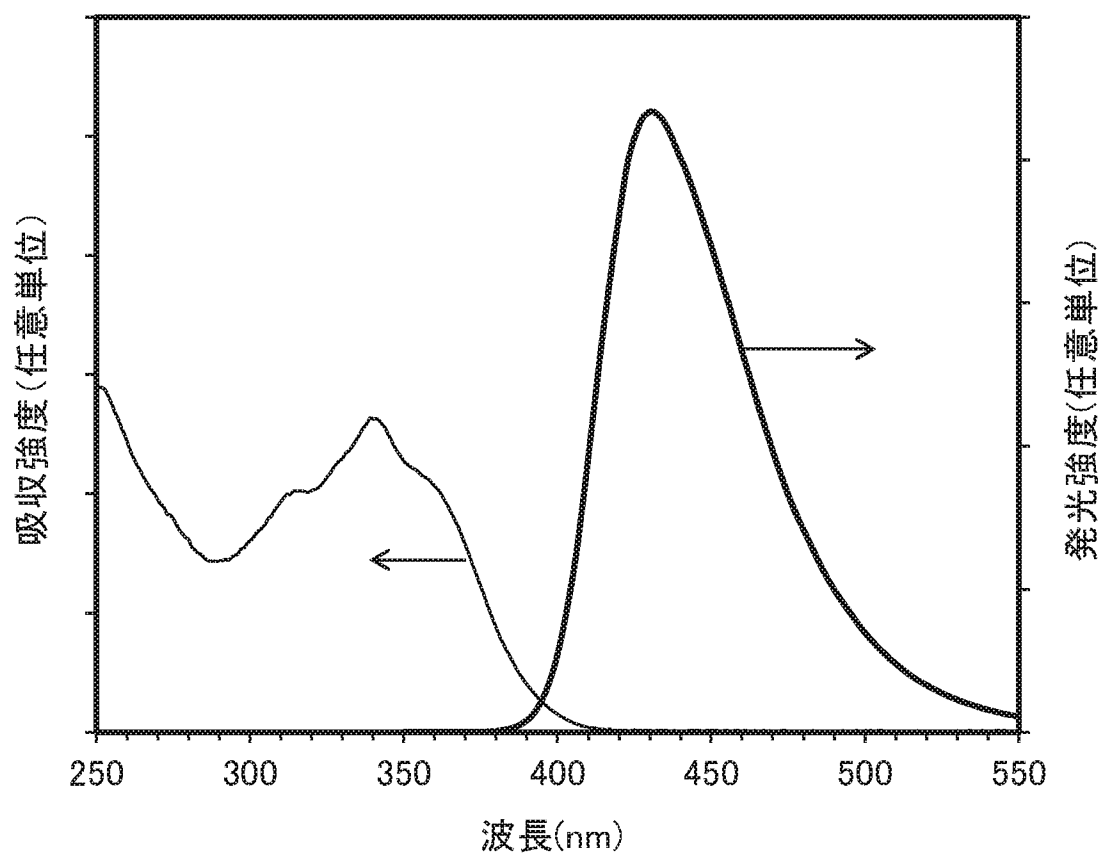


図 63A

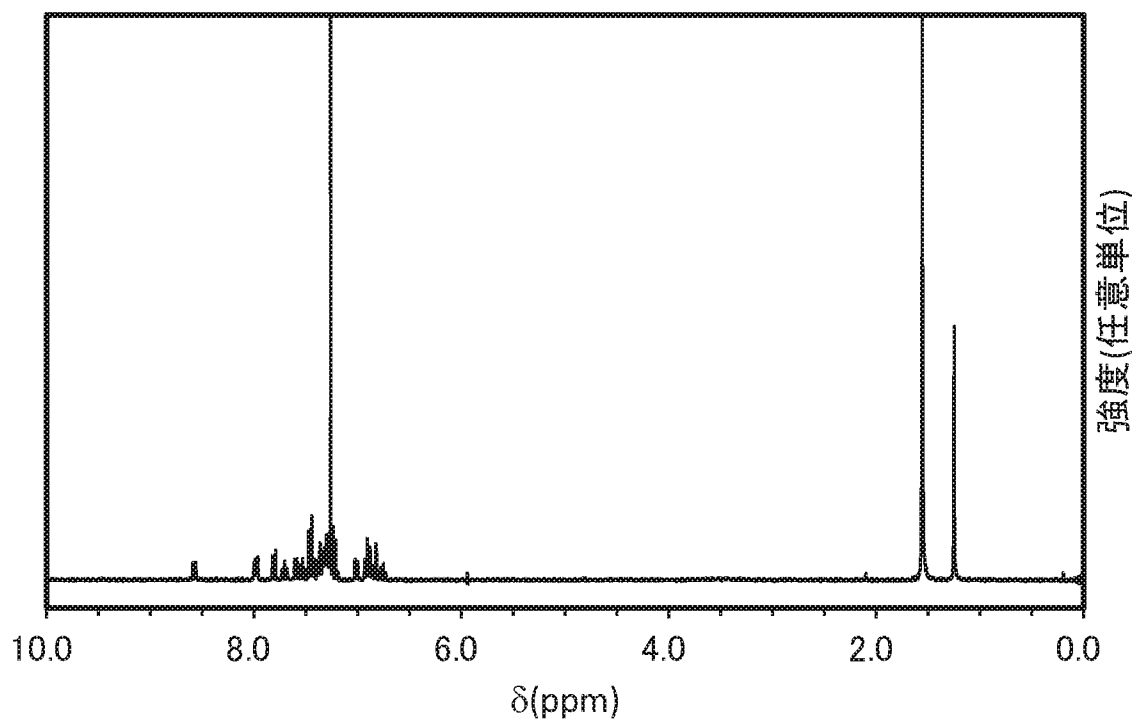


図 63B

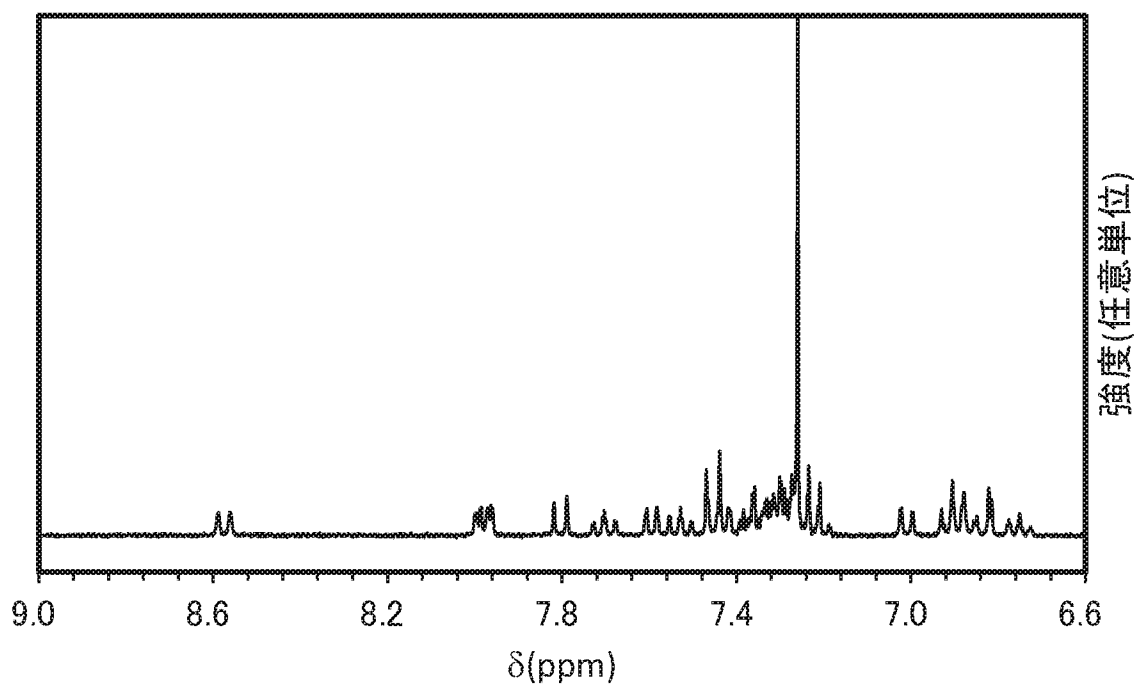


図 64

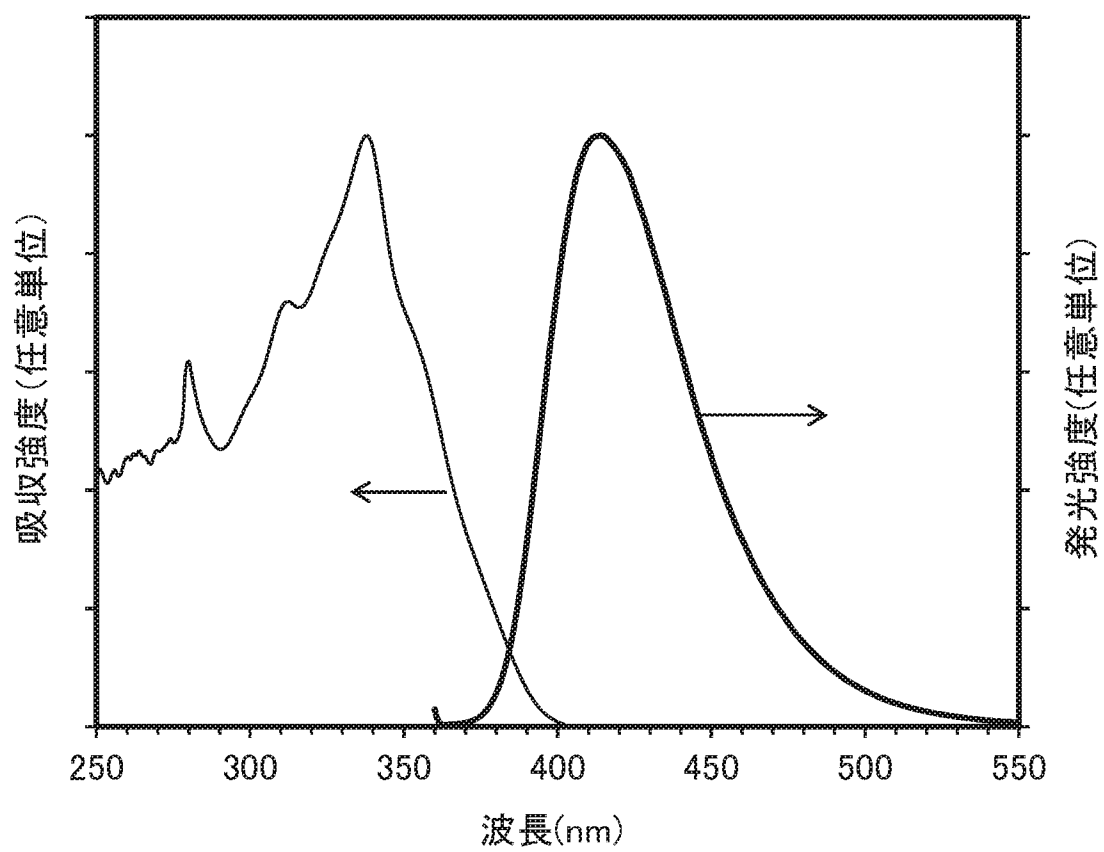


図 65

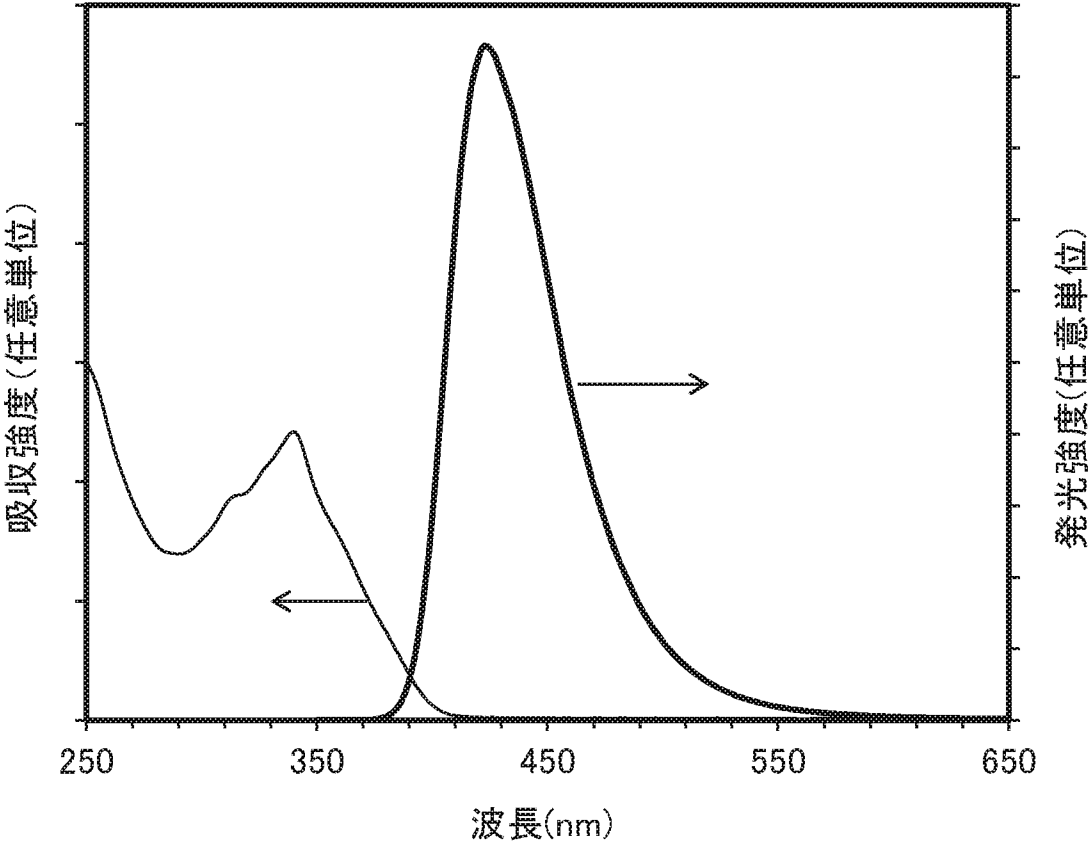


図 66A

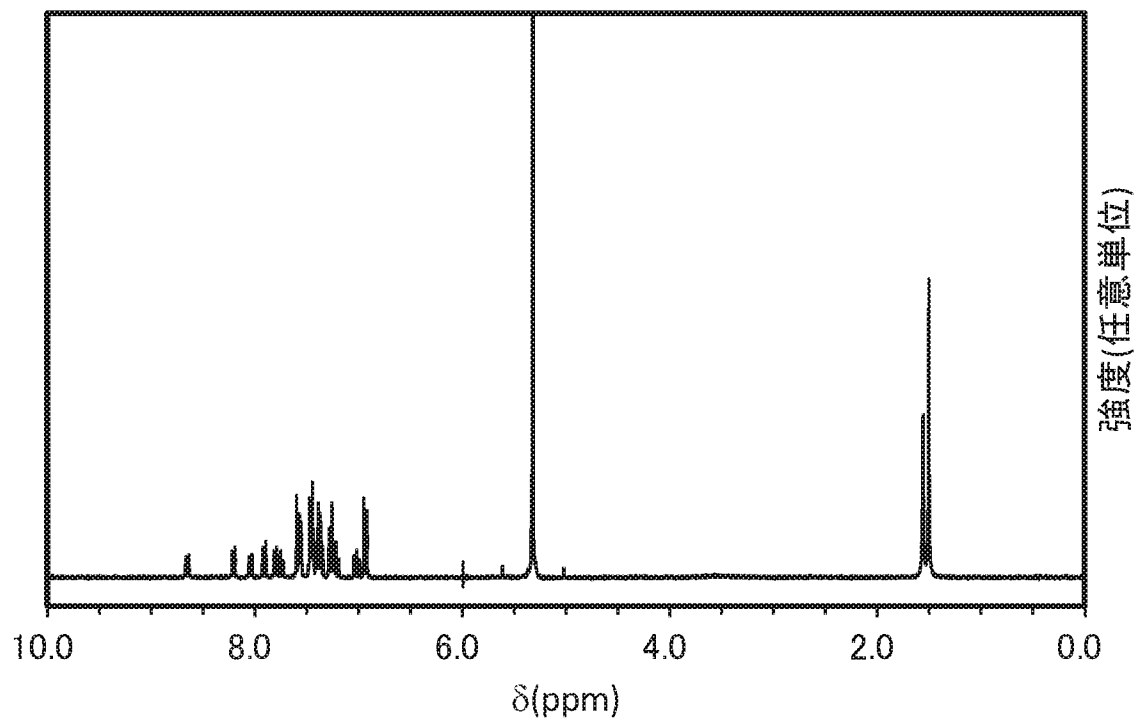


図 66B

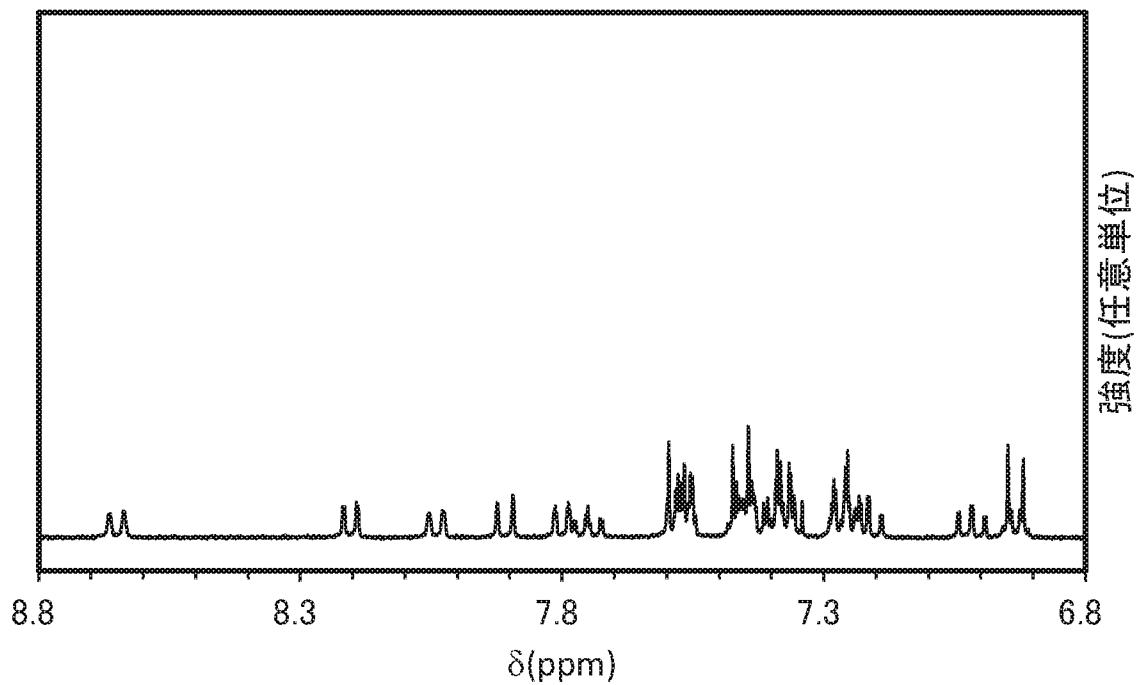


図 67

52/66

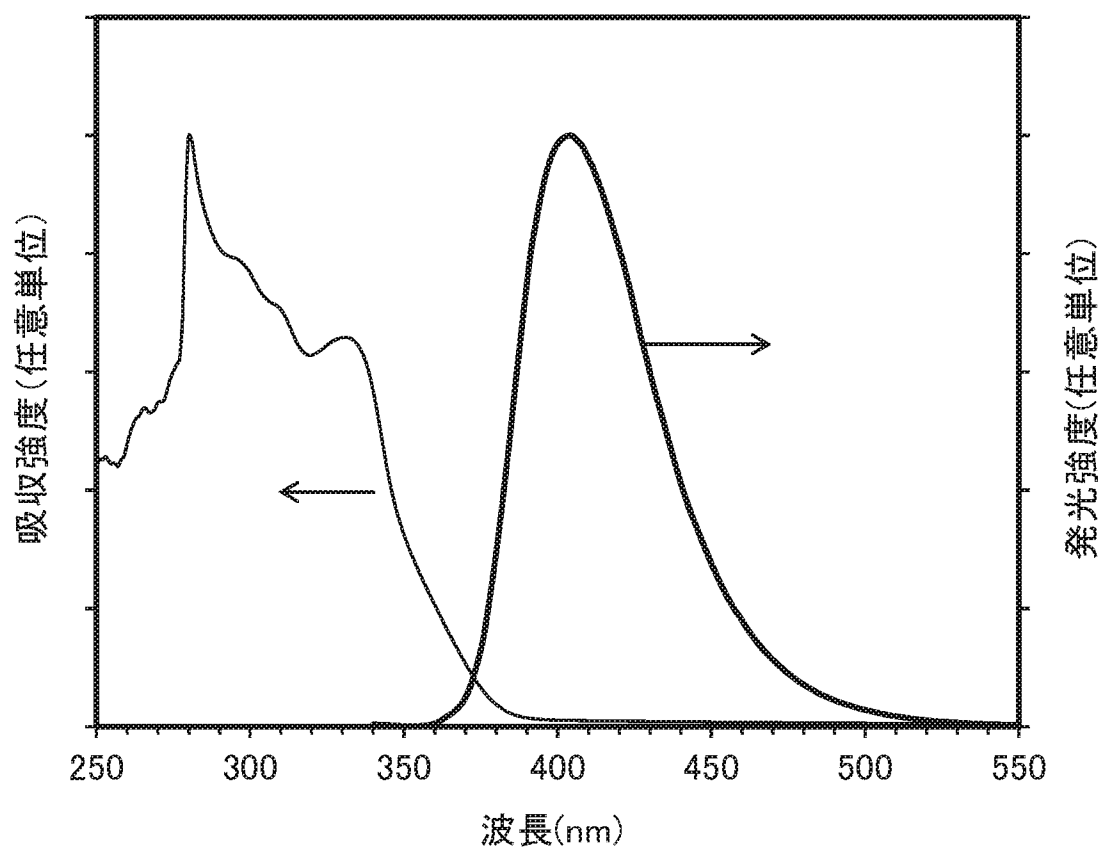


図 68

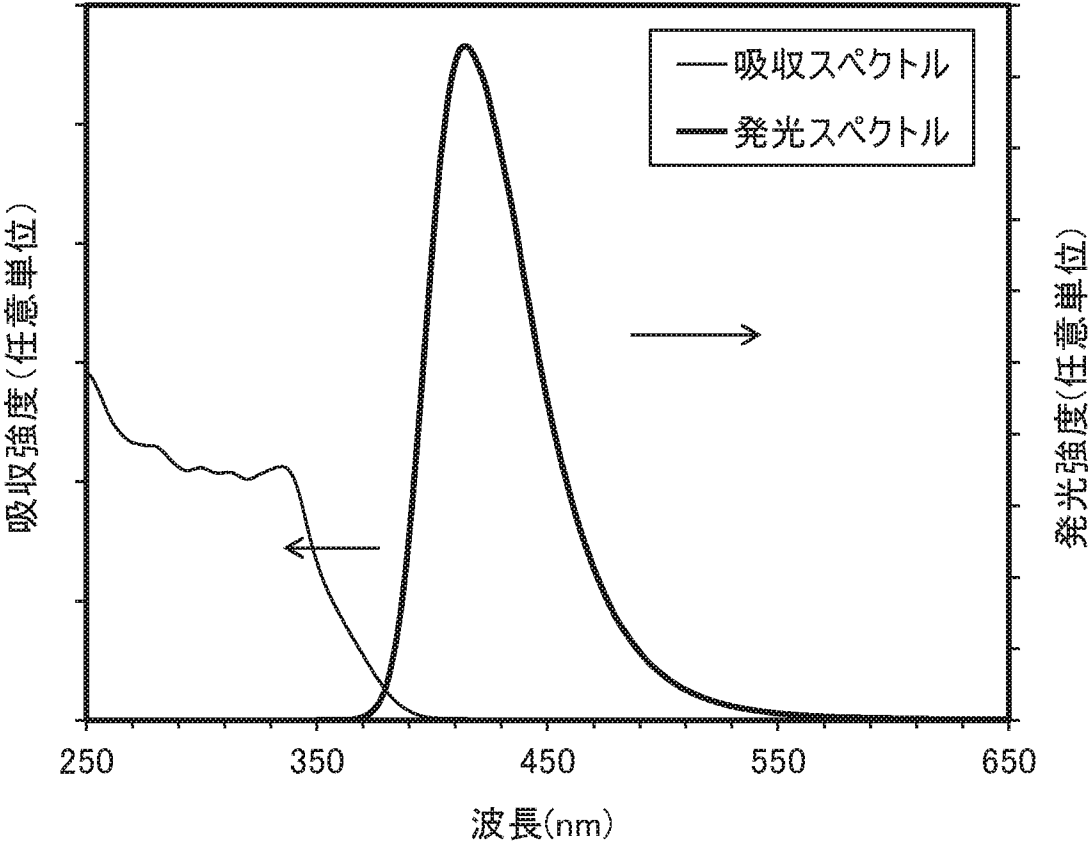


図 69

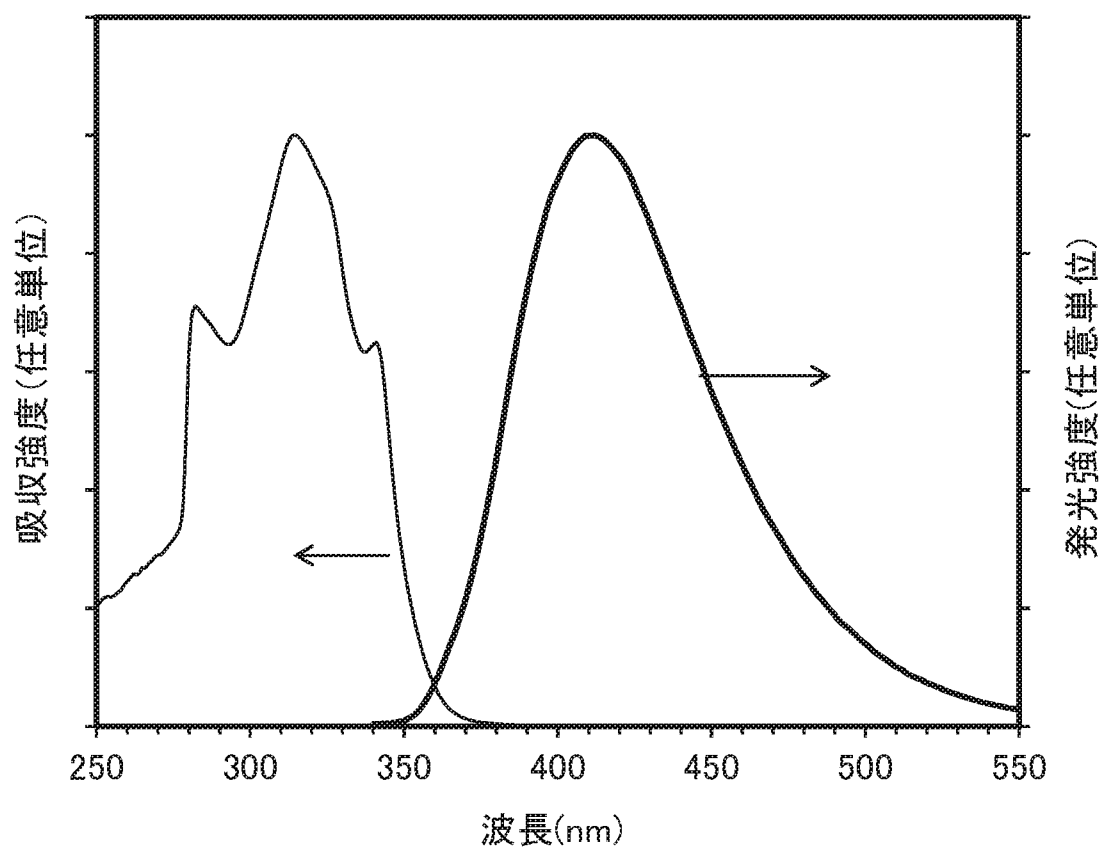


図 70

55/66

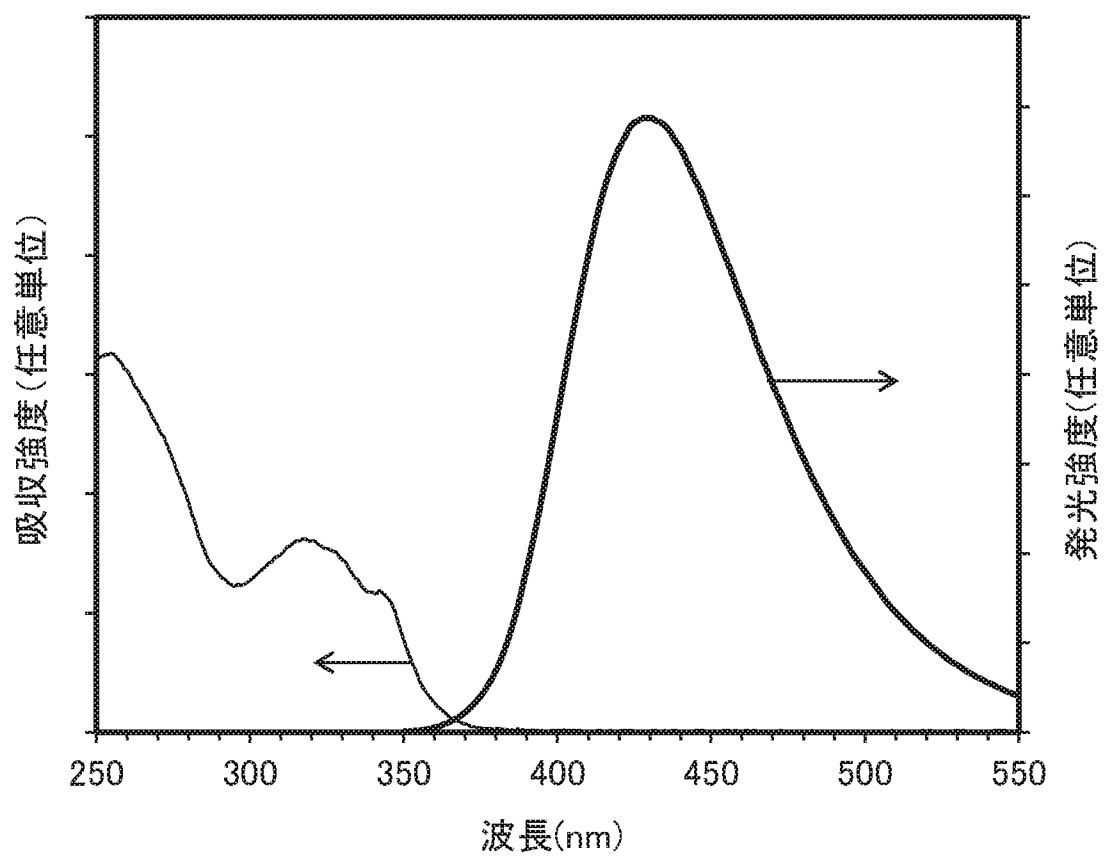


図 71

56/66

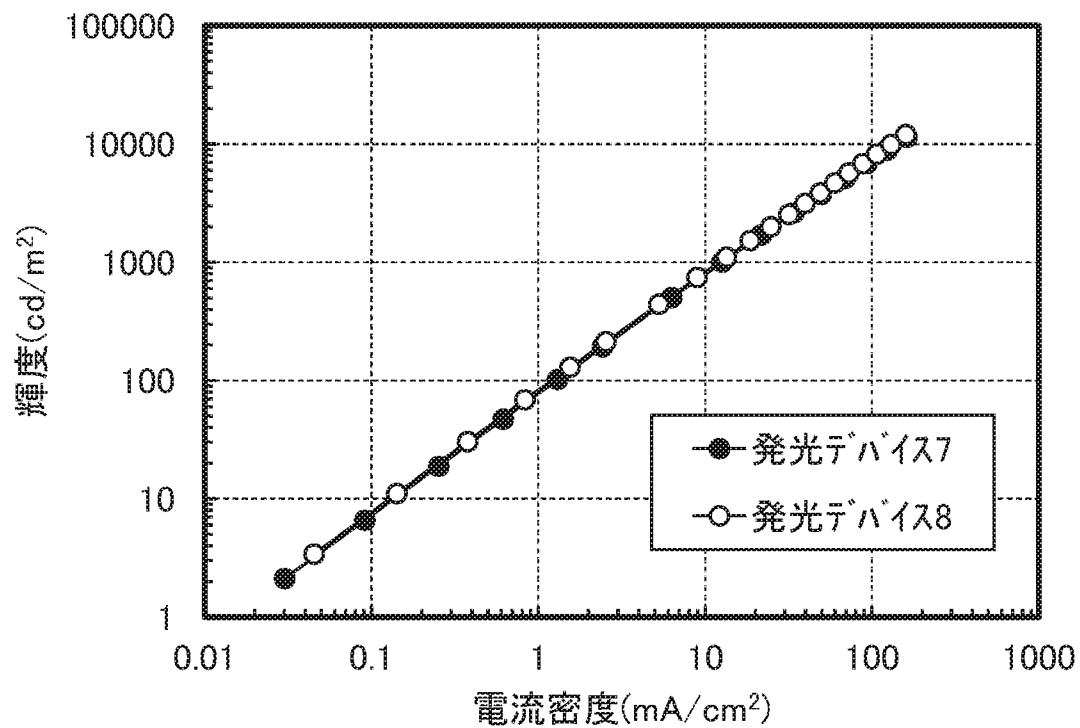


図 72

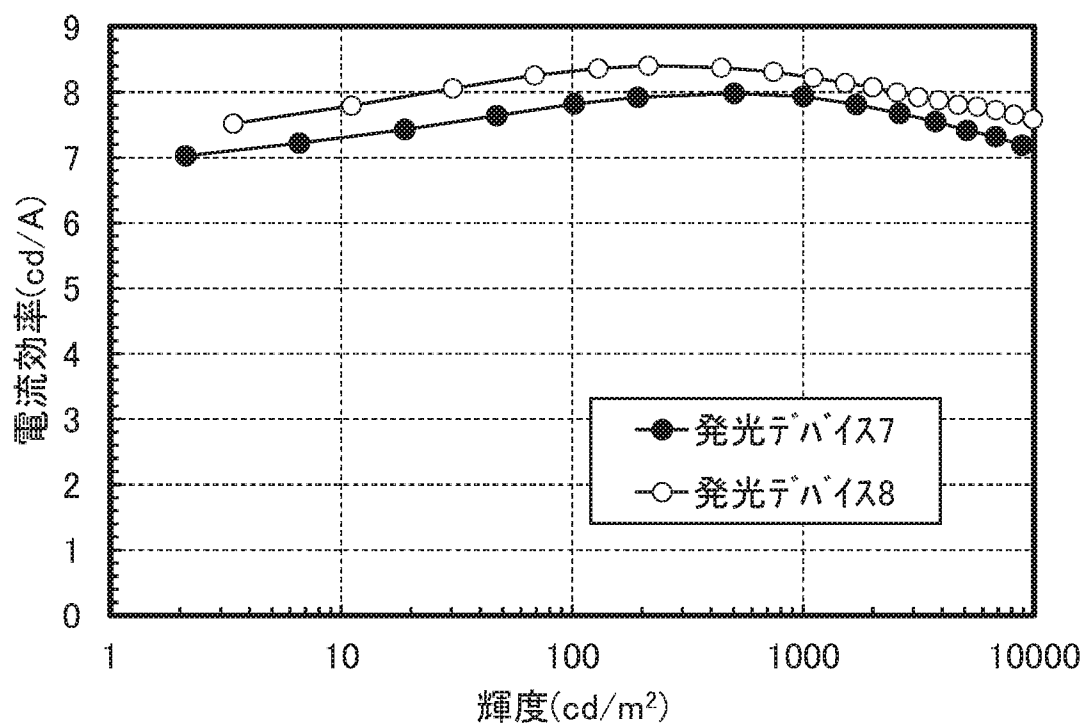


図 73

57/66

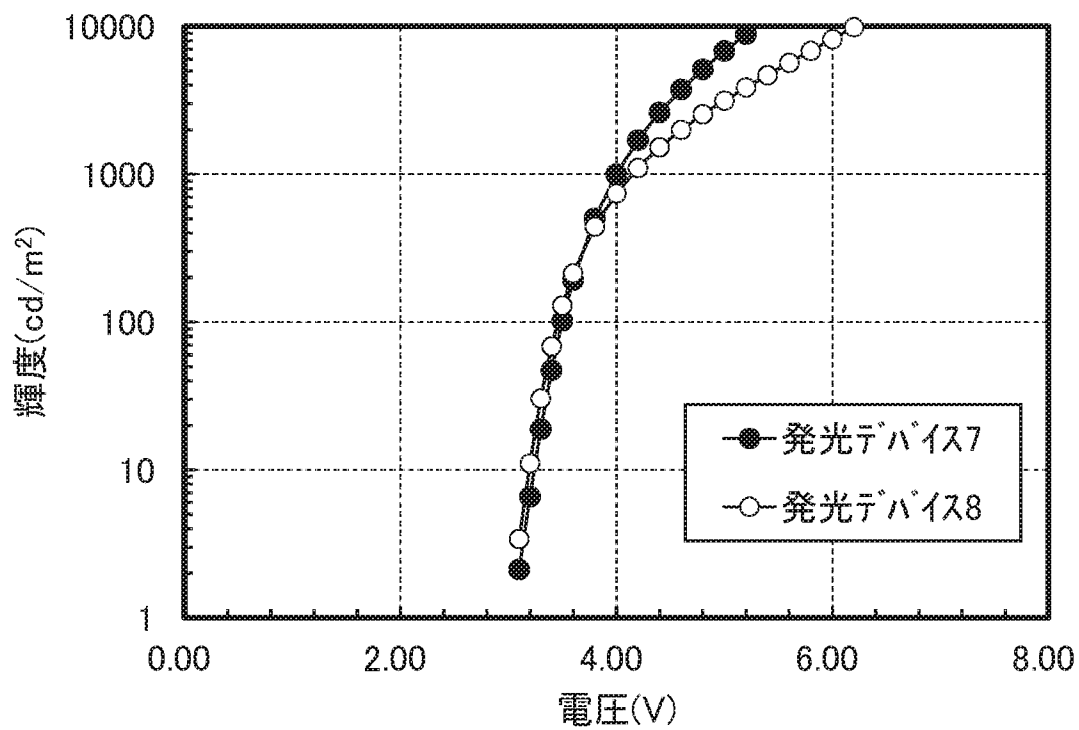


図 74

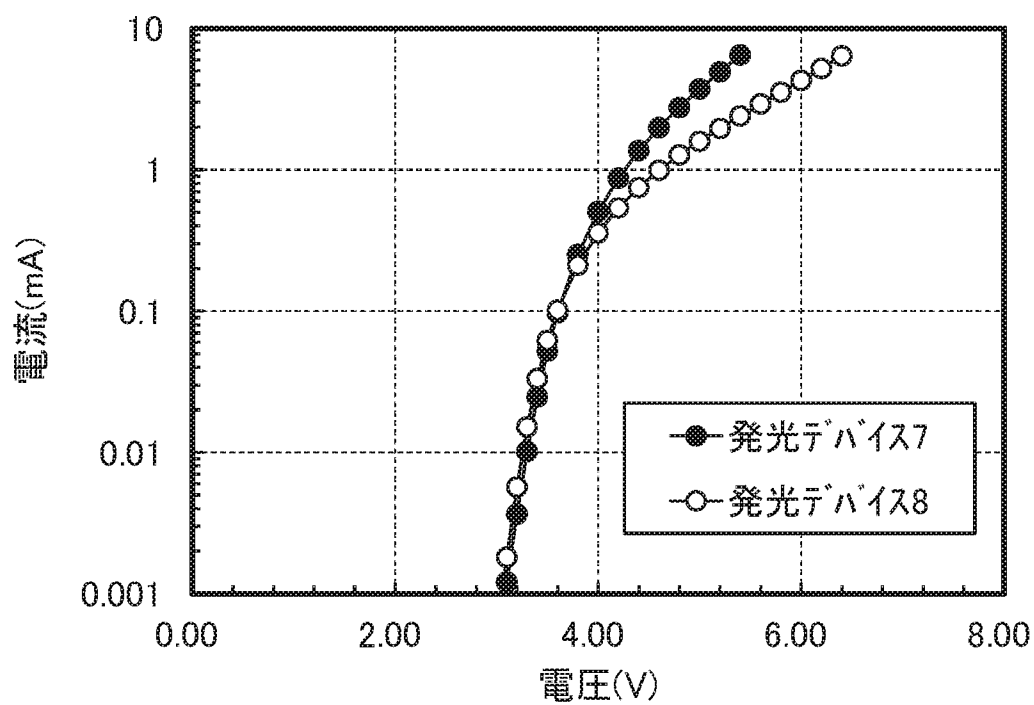


図 75

58/66

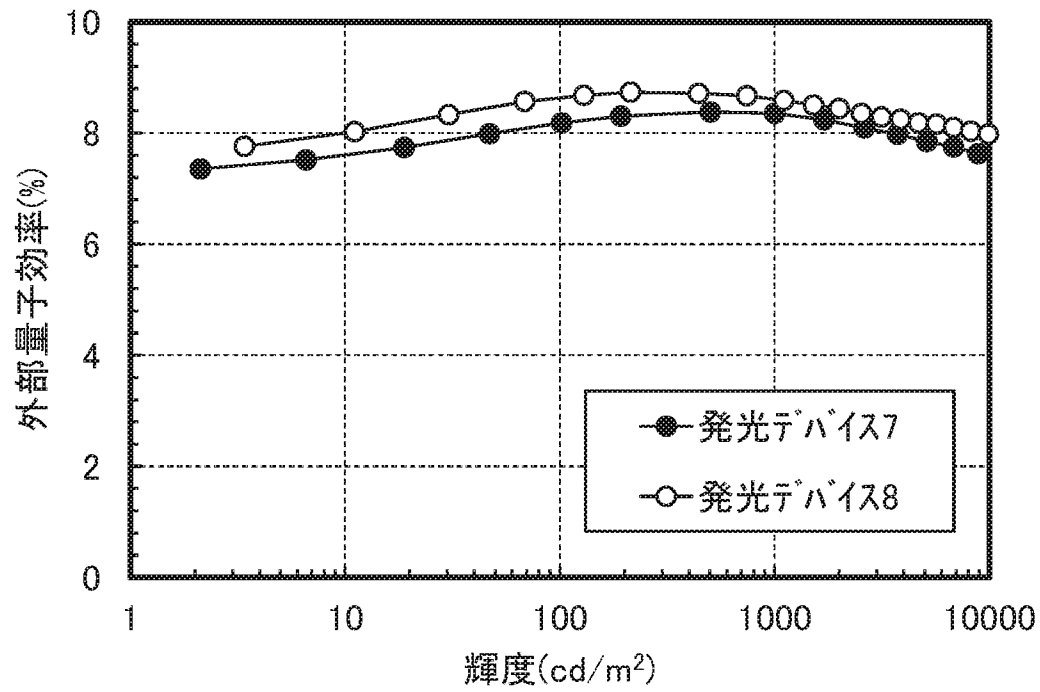


図 76

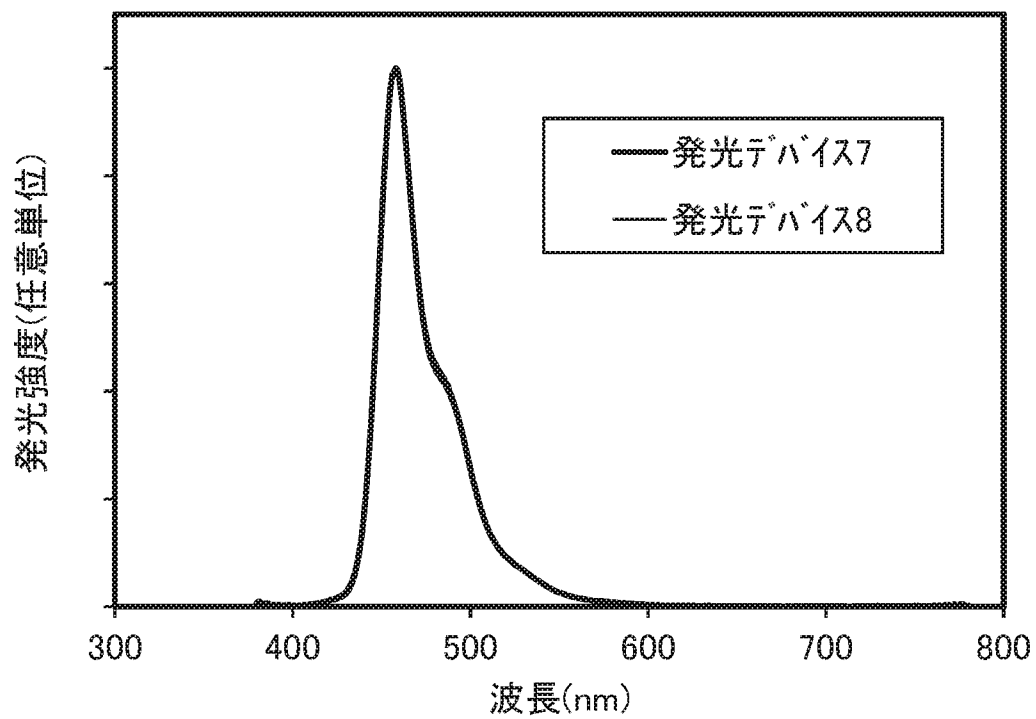


図 77

59/66

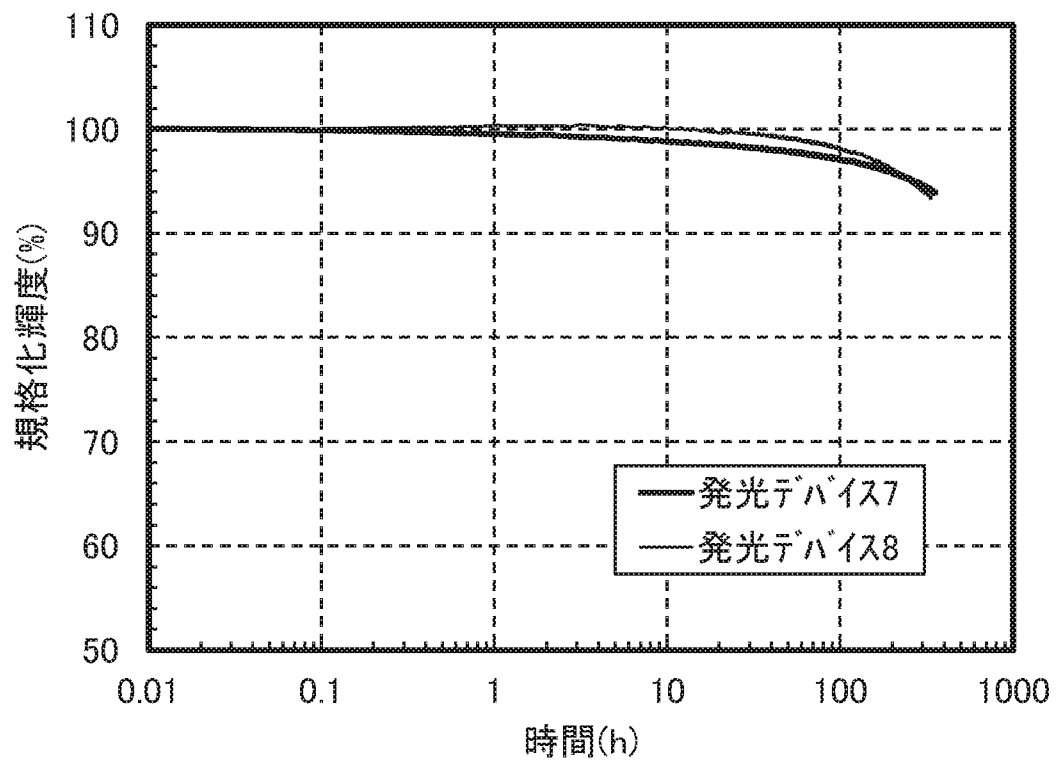


図 78

60/66

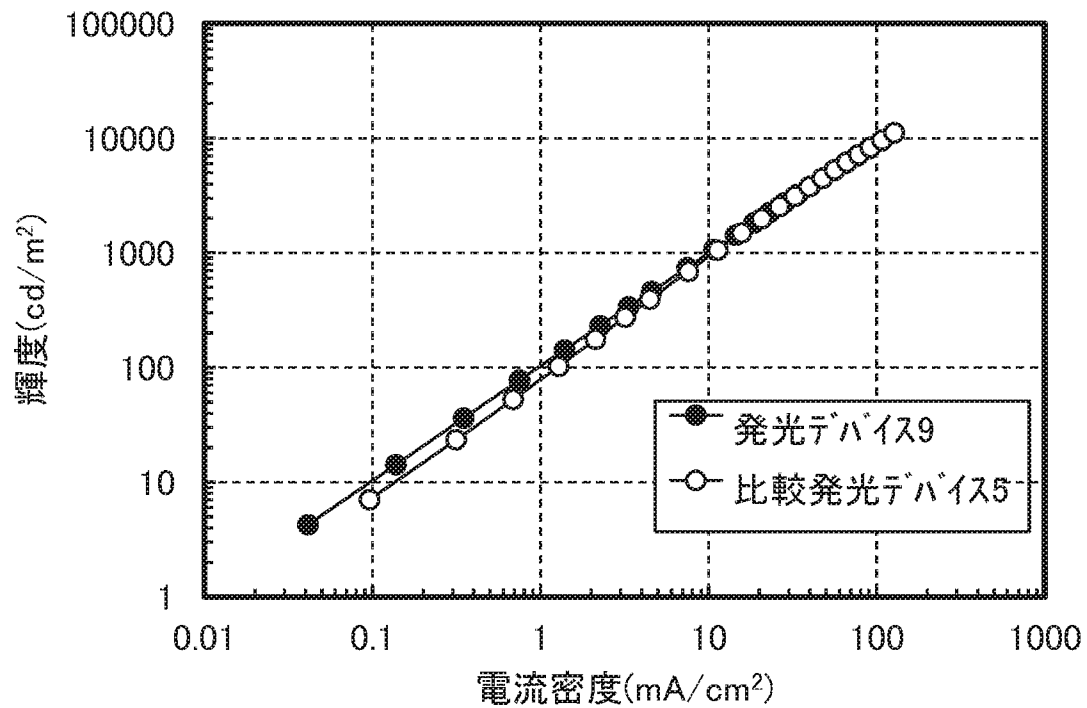


図 79

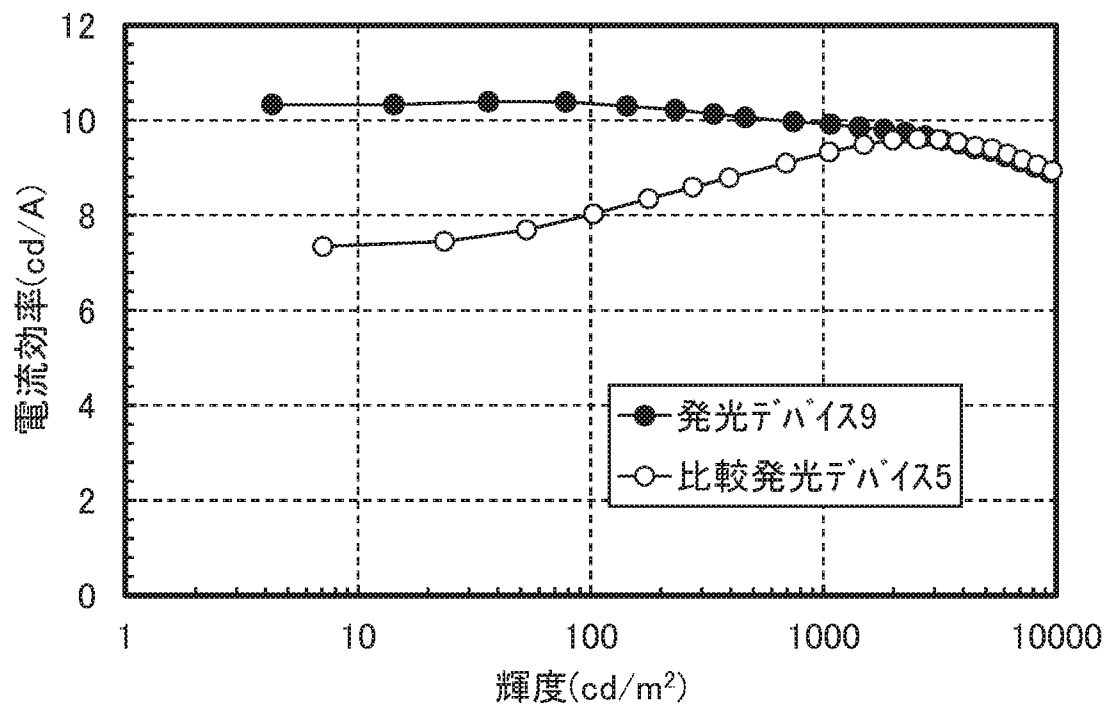


図 80

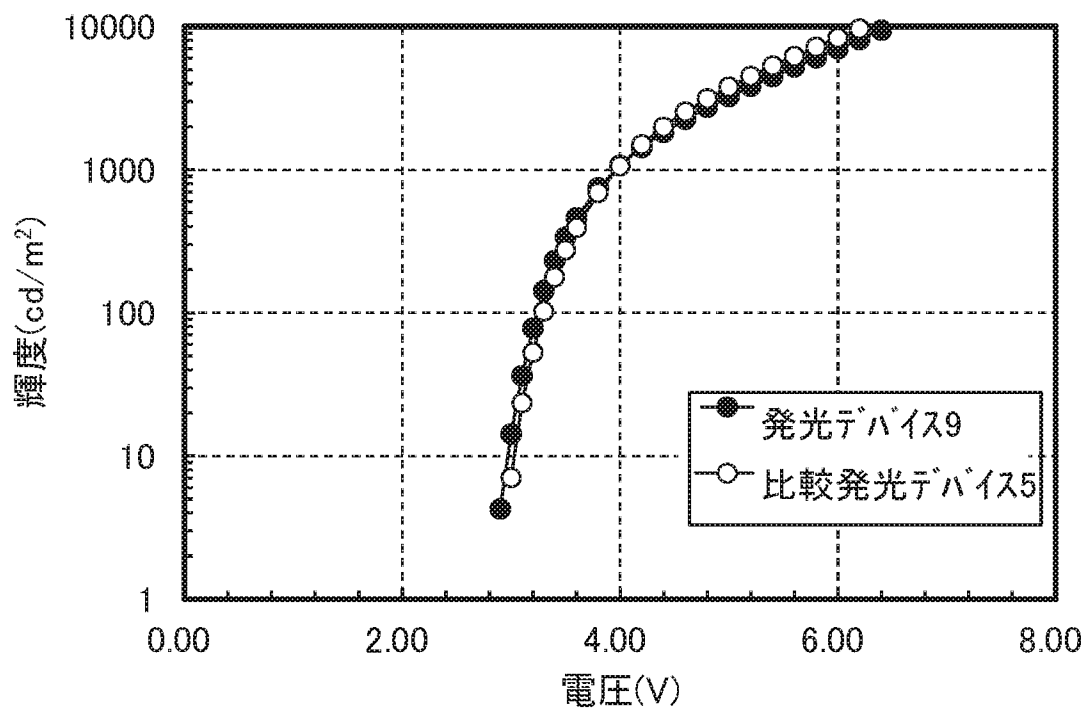


図 81

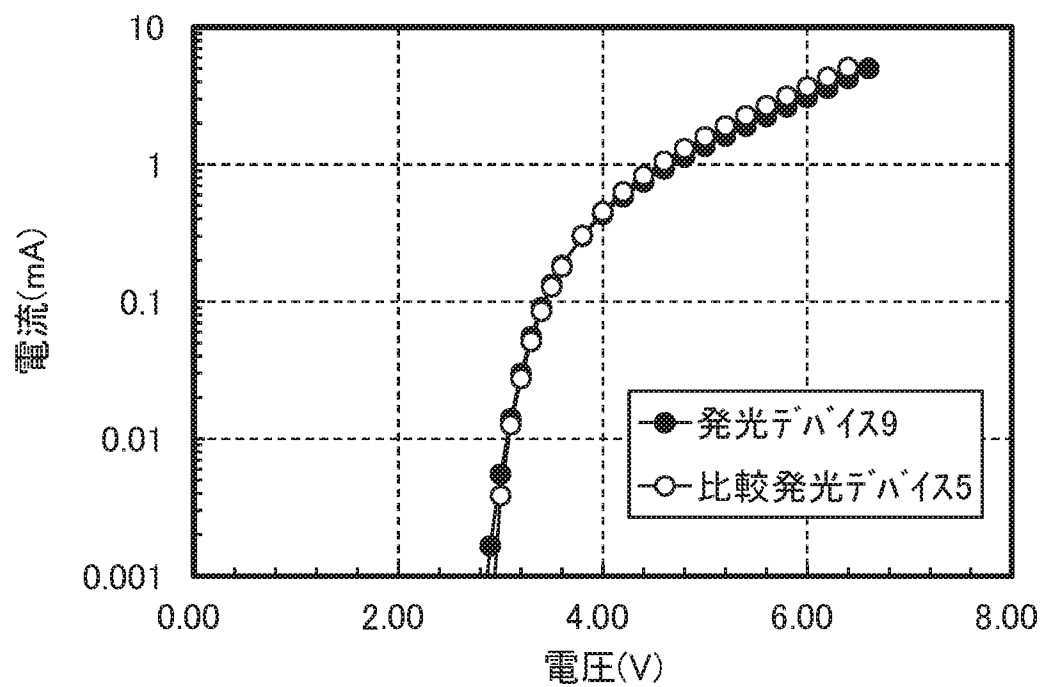


図 82

62/66

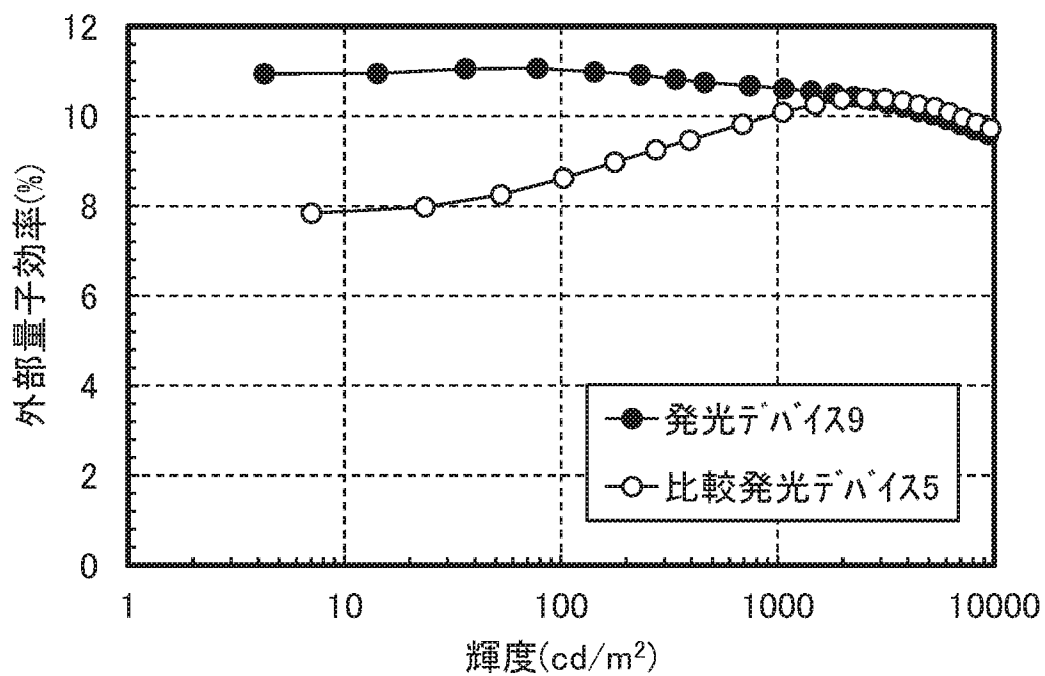


図 83

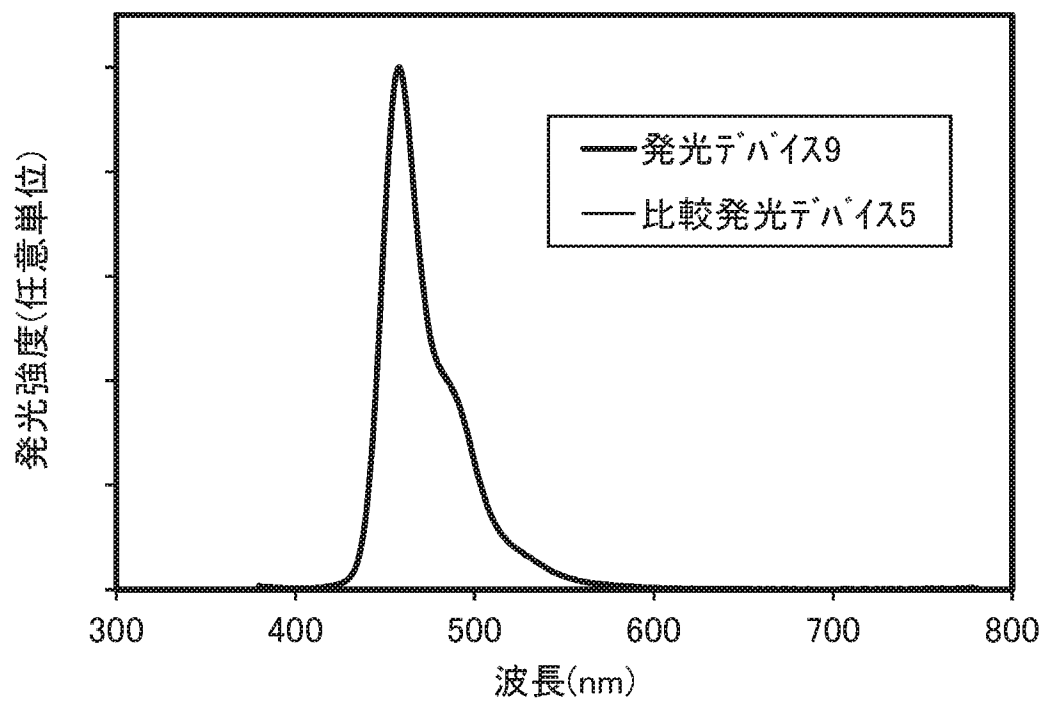


図 84

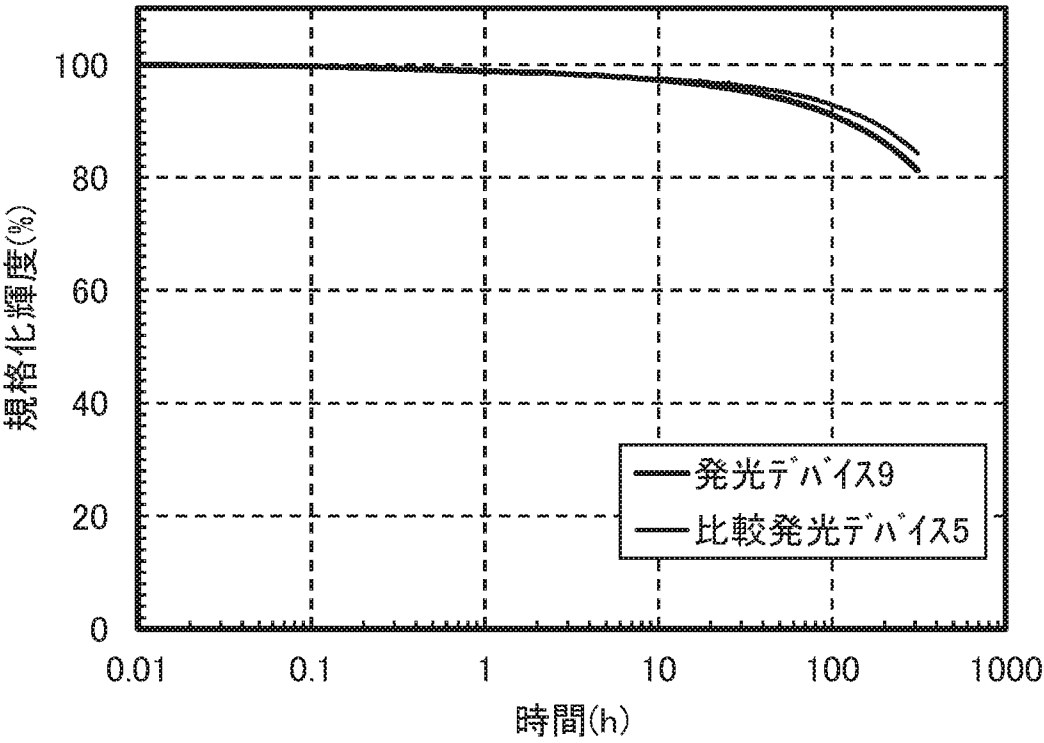


図 85

64/66

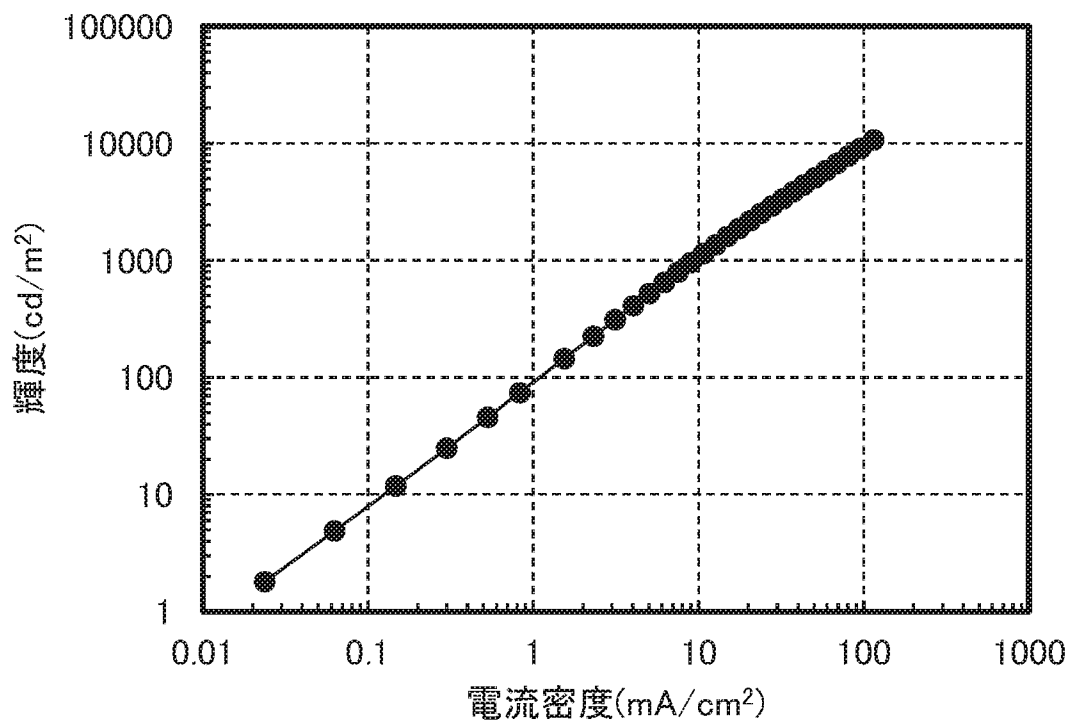


図 86

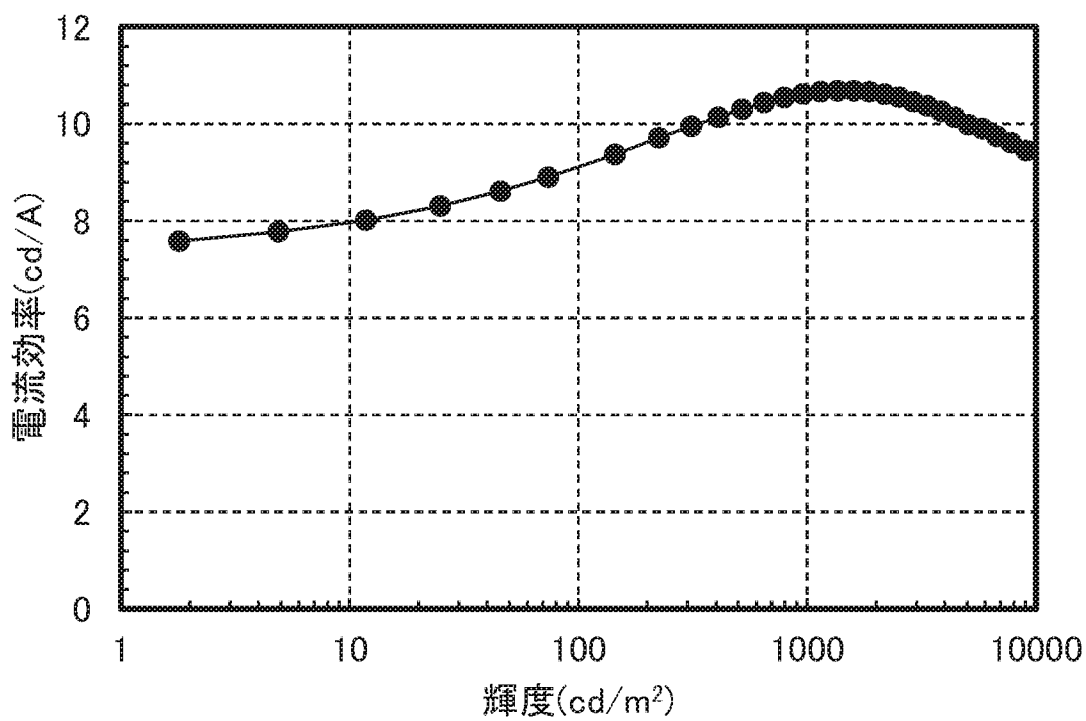


図 87

65/66

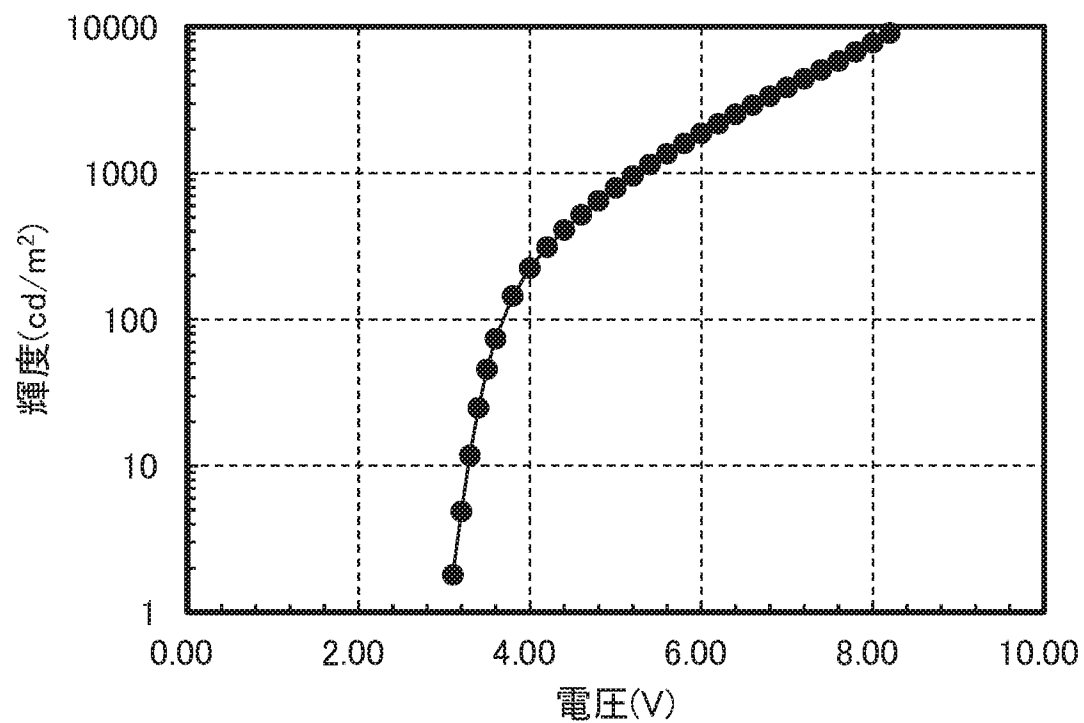


図 88

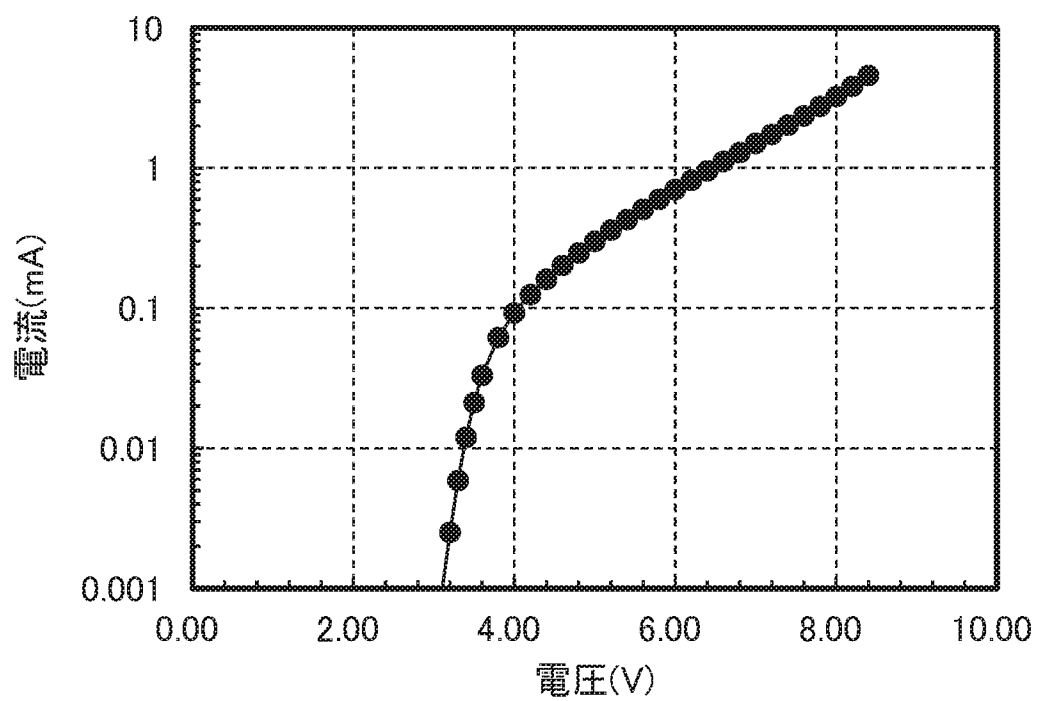


図 89

66/66

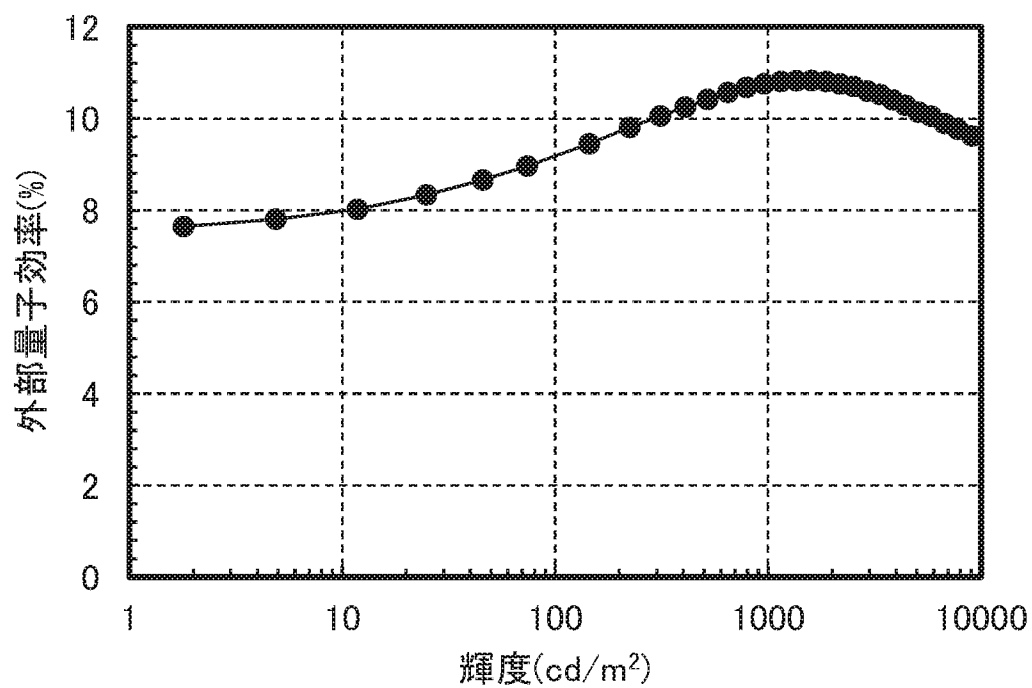
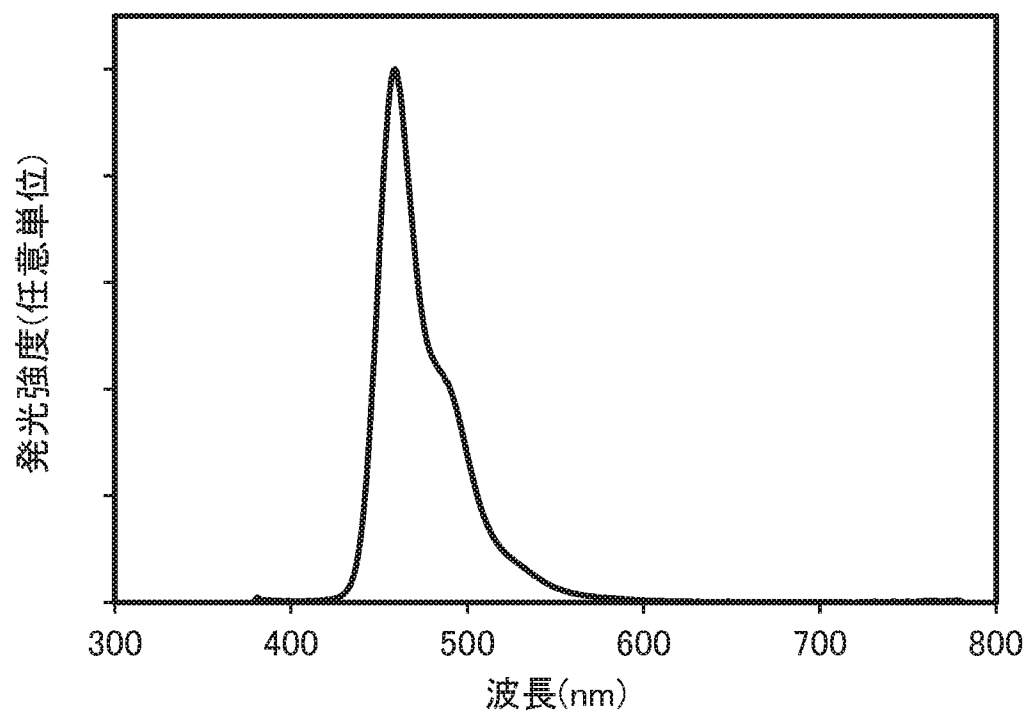


図 90



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/IB2020/058589

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07D 409/10(2006.01)i; C07D 471/04(2006.01)i; C07D 209/86(2006.01)i; C07D 307/91(2006.01)i; H01L 51/50(2006.01)i
 FI: C07D307/91; H05B33/22 D; H05B33/14 B; C07D209/86; C07D409/10;
 C07D471/04 112T

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07D409/10; C07D471/04; C07D209/86; C07D307/91; H01L51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	KR 10-2019-0007789 A (SFC CO., LTD.) 23 January 2019 (2019-01-23) claims, compounds H69-H72, examples	1, 2, 4, 5, 7, 9-20 3, 6, 8
X	CN 109400560 A (CHANGCHUN HAIPURUNSI TECHNOLOGY CO., LTD.) 01 March 2019 (2019-03-01) claims, compound 89, examples	1, 2, 4, 5, 9-20
P, X	CN 110835304 A (JIANGSU SUNERA TECHNOLOGY CO., LTD.) 25 February 2020 (2020-02-25) claims, compound (158), examples	1, 2, 4, 5, 9-20
P, X	CN 110818675 A (YANTAI XIANHUA CHEM-TECH CO., LTD.) 21 February 2020 (2020-02-21) claims, compound A12, examples	1, 2, 4, 5, 9, 11, 13-20



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
 01 December 2020 (01.12.2020)

Date of mailing of the international search report
 15 December 2020 (15.12.2020)

Name and mailing address of the ISA/
 Japan Patent Office
 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
 Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/IB2020/058589

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
KR 10-2019-0007789 A	23 Jan. 2019	(Family: none)	
CN 109400560 A	01 Mar. 2019	(Family: none)	
CN 110835304 A	25 Feb. 2020	(Family: none)	
CN 110818675 A	21 Feb. 2020	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C07D 409/10(2006.01)i; C07D 471/04(2006.01)i; C07D 209/86(2006.01)i; C07D 307/91(2006.01)i; H01L 51/50(2006.01)i FI: C07D307/91; H05B33/22 D; H05B33/14 B; C07D209/86; C07D409/10; C07D471/04 112T		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C07D409/10; C07D471/04; C07D209/86; C07D307/91; H01L51/50 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	KR 10-2019-0007789 A (SFC CO., LTD.) 23.01.2019 (2019-01-23) 特許請求の範囲、化合物H69~H72、実施例	1, 2, 4, 5, 7, 9-20 3, 6, 8
X	CN 109400560 A (CHANGCHUN HAIPURUNSI TECHNOLOGY CO., LTD.) 01.03.2019 (2019-03-01) 特許請求の範囲、化合物89、実施例	1, 2, 4, 5, 9-20
P, X	CN 110835304 A (JIANGSU SUNERA TECHNOLOGY CO., LTD.) 25.02.2020 (2020-02-25) 請求の範囲、化合物(158)、実施例	1, 2, 4, 5, 9-20
P, X	CN 110818675 A (YANTAI XIANHUA CHEM-TECH CO., LTD.) 21.02.2020 (2020-02-21) 特許請求の範囲、化合物A12、実施例	1, 2, 4, 5, 9, 11, 13-20
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 01.12.2020		国際調査報告の発送日 15.12.2020
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 三上 晶子 4P 4042 電話番号 03-3581-1101 内線 3492

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/IB2020/058589

引用文献		公表日		パテントファミリー文献	公表日
KR	10-2019-0007789	A	23.01.2019	(ファミリーなし)	
CN	109400560	A	01.03.2019	(ファミリーなし)	
CN	110835304	A	25.02.2020	(ファミリーなし)	
CN	110818675	A	21.02.2020	(ファミリーなし)	