



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I464163 B

(45)公告日：中華民國 103 (2014) 年 12 月 11 日

(21)申請案號：098129715

(22)申請日：中華民國 98 (2009) 年 09 月 03 日

(51)Int. Cl. : C07D413/10 (2006.01)

C09K11/06 (2006.01)

H01L51/50 (2006.01)

(30)優先權：2008/09/05 日本

2008-228252

2009/03/03 日本

2009-049170

(71)申請人：半導體能源研究所股份有限公司 (日本) SEMICONDUCTOR ENERGY
LABORATORY CO., LTD. (JP)

日本

(72)發明人：野村洸子 NOMURA, HIROKO (JP)；川上祥子 KAWAKAMI, SACHIKO (JP)；大
澤信晴 OHSAWA, NOBUHARU (JP)；瀨尾哲史 SEO, SATOSHI (JP)

(74)代理人：林志剛

(56)參考文獻：

US 2003/0129448A1

WO 2007/090550A1

審查人員：陳依微

申請專利範圍項數：9 項 圖式數：34 共 160 頁

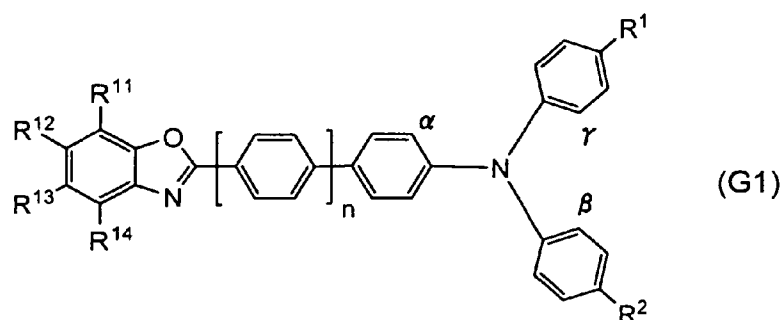
(54)名稱

苯并𪗇唑衍生物，以及使用苯并𪗇唑衍生物的發光元件、發光裝置與電子裝置

BENZOXAZOLE DERIVATIVE, AND LIGHT-EMITTING ELEMENT, LIGHT-EMITTING DEVICE,
AND ELECTRONIC DEVICE USING BENZOXAZOLE DERIVATIVE

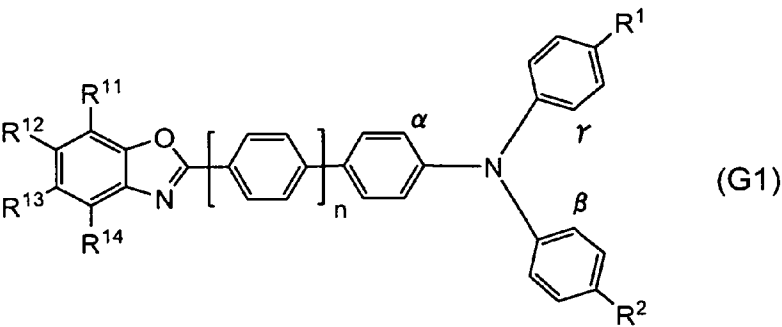
(57)摘要

本發明的目的在於提供激發能量大的，尤其是三重態激發能大的新穎苯并𪗇唑衍生物，且其為雙極性物質。本發明提供以下面通式(G1)表示的苯并𪗇唑衍生物。



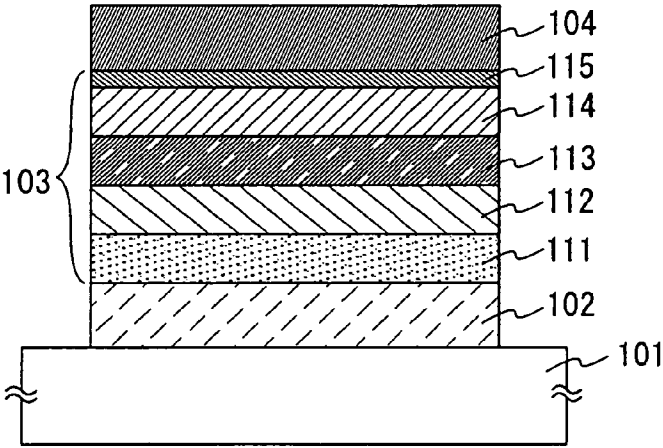
在式中， R^1 和 R^2 分別表示氫原子、碳原子數為 1 至 4 的烷基、或取代或未取代的碳原子數為 6 至 13 的芳基，被取代的芳基的取代基也可以彼此鍵合而形成環，並且該環結構可以為螺環結構；另外， R^{11} 至 R^{14} 分別表示氫原子、鹵素、碳原子數為 1 至 4 的烷基、或未取代的碳原子數為 6 至 10 的芳基；再者， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成𪗇唑骨架，以及， n 為 0 至 3。

Disclosed is a novel benzoxazole derivative which has high excitation energy, particularly high triplet excitation energy, and is a bipolar substance. A benzoxazole derivative represented by the following General Formula (G1) is provided.



In the formula, R¹ and R² independently represent a hydrogen atom, an alkyl group with 1 to 4 carbon atoms, or a substituted or unsubstituted aryl group with 6 to 13 carbon atoms, substituents of the substituted aryl group may be bonded to form a ring which may form a spiro ring structure, R¹¹ to R¹⁴ independently represent a hydrogen atom, a halogen, an alkyl group with 1 to 4 carbon atoms, or an unsubstituted aryl group with 6 to 10 carbon atoms, a bond formed between any two of α, β, and γ forms a carbazole skeleton, and n is 0 to 3.

圖 1A



- 101 . . . 基板
- 102 . . . 第一電極
- 103 . . . EL 層
- 104 . . . 第二電極
- 111 . . . 第一層(電洞注入層)
- 112 . . . 第二層(電洞傳輸層)
- 113 . . . 第三層(發光層)
- 114 . . . 第四層(電子傳輸層)
- 115 . . . 第五層(電子注入層)

發明專利說明書

(本申請書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：98129715

G01D 413/10

(2006.01)

※申請日：98年09月03日

※IPC分類：

G09K 11/06

(2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

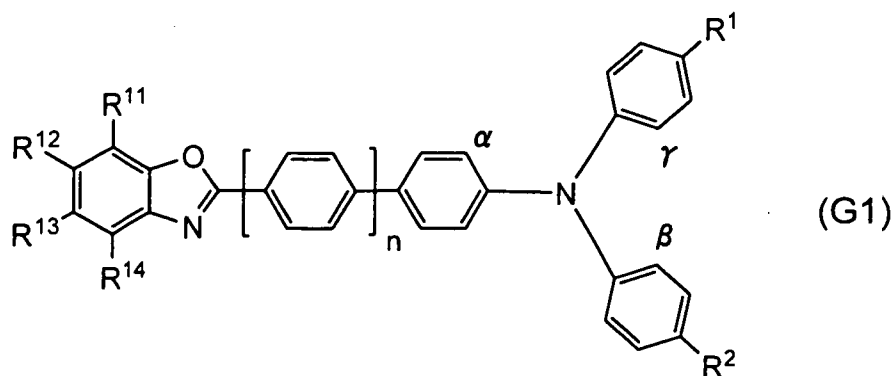
H01L 51/50

(2006.01)

苯并噁唑衍生物，以及使用苯并噁唑衍生物的發光元件、發光裝置與電子裝置
Benzoxazole derivative, and light-emitting element, light-emitting device, and electronic device using benzoxazole derivative

二、中文發明摘要：

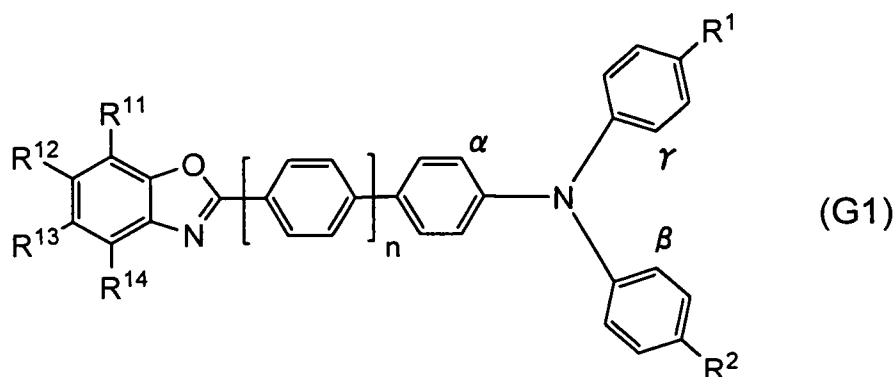
本發明的目的在於提供激發能量大的，尤其是三重態激發能大的新穎苯并噁唑衍生物，且其為雙極性物質。本發明提供以下面通式 (G1) 表示的苯并噁唑衍生物。



在式中， R^1 和 R^2 分別表示氫原子、碳原子數為 1 至 4 的烷基、或取代或未取代的碳原子數為 6 至 13 的芳基，被取代的芳基的取代基也可以彼此鍵合而形成環，並且該環結構可以為螺環結構；另外， R^{11} 至 R^{14} 分別表示氫原子、鹵素、碳原子數為 1 至 4 的烷基、或未取代的碳原子數為 6 至 10 的芳基；再者， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成呋唑骨架，以及， n 為 0 至 3。

三、英文發明摘要：

Disclosed is a novel benzoxazole derivative which has high excitation energy, particularly high triplet excitation energy, and is a bipolar substance. A benzoxazole derivative represented by the following General Formula (G1) is provided.



In the formula, R^1 and R^2 independently represent a hydrogen atom, an alkyl group with 1 to 4 carbon atoms, or a substituted or unsubstituted aryl group with 6 to 13 carbon atoms, substituents of the substituted aryl group may be bonded to form a ring which may form a spiro ring structure, R^{11} to R^{14} independently represent a hydrogen atom, a halogen, an alkyl group with 1 to 4 carbon atoms, or an unsubstituted aryl group with 6 to 10 carbon atoms, a bond formed between any two of α , β , and γ forms a carbazole skeleton, and n is 0 to 3.

四、指定代表圖：

(一) 本案指定代表圖為：第(1A)圖。

(二) 本代表圖之元件符號簡單說明：

101：基板

102：第一電極

103：EL層

104：第二電極

111：第一層(電洞注入層)

112：第二層(電洞傳輸層)

113：第三層(發光層)

114：第四層(電子傳輸層)

115：第五層(電子注入層)

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：無

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明關於苯并呋啞衍生物、使用苯并呋啞衍生物的發光元件、發光裝置及電子裝置。

【先前技術】

近年來，已經對利用電致發光的發光元件的研究開發日益火熱。這種發光元件的基本結構係在一對電極之間夾有包含發光物質的層。藉由對這種元件施加電壓，可以獲得來自發光物質的發光。

這種發光元件因為是自發光型，所以具有如下優點：與液晶顯示器相比其像素的可見性高；不必使用背光燈等。因此，這種發光元件被認為較佳用作平板顯示元件。此外，這種發光元件的優點還在於可以製造為厚度薄且重量輕之元件。另外，還具有非常快的回應速度。

另外，因為這種發光元件可以形成為膜狀，所以藉由形成大面積的元件就能容易地獲得面發光。面發光具有不容易藉由白熾燈泡和以 LED 為代表的點光源或以螢光燈為代表的線光源等的光源獲得的特徵，因而，上述發光元件的作為能夠應用於照明等的面光源的利用價值也很高。

該利用電致發光的發光元件可以根據發光物質是有機化合物還是無機化合物而被大致分類，在使用有機化合物作為發光物質的情況下，藉由對發光元件施加電壓，電子及電洞分別從一對電極注入到包含發光有機化合物的層，

而電流流過。這些載流子（電子和電洞）的再結合（*recombine*）引起發光有機化合物形成激發態，並且在從該激發態回到基態時發光。

由於這樣的機制，這種發光元件被稱為電流激發型發光元件。注意，作為有機化合物所形成的激發態可以採用單重激發態或三重激發態。以單重激發態（ S^* ）發射的光被稱為螢光，而以三重激發態（ T^* ）發射的光被稱為磷光。另外，在發光元件中的生成比率統計上認為是 $S^*:T^*=1:3$ 。

將單重激發態轉換成發光的化合物（以下稱為螢光化合物）在室溫下沒有觀察到來自三重激發態的發光（磷光），而僅觀察到來自單重激發態的發光（螢光）。從而，在使用螢光化合物的發光元件中的內量子效率（所產生的光子對於注入的載流子的比率）基於 $S^*:T^*=1:3$ 而設定為具有 25% 的理論限度。

另一方面，如果使用將三重激發態轉換為發光的化合物（以下稱為磷光化合物），內量子效率可在理論上提高到 75% 至 100%。就是說，可以實現螢光化合物的 3 倍至 4 倍的發光效率。因為這些原因，為了實現高效率的發光元件，近年來積極地開發出使用磷光化合物的發光元件（例如參照非專利文件 1）。

在使用上述的磷光化合物形成發光元件的發光層的情況下，在很多情況下以在由其他物質構成的基質中分散該磷光化合物的方式形成該發光層，以便抑制磷光化合物的

濃度猝滅或由於三重態-三重態湮滅（annihilation）的猝滅。此時，成為基質的物質被稱為主體材料，分散在基質中的物質如磷光化合物被稱為客體材料。

在將磷光化合物用作客體材料的情況下，主體材料所需要的性質是具有比該磷光化合物大的三重態激發能（基態和三重激發態之間的能級差別）的。在非專利文件 1 中用作主體材料的 CBP 被認為具有比顯示綠色至紅色的發光的磷光化合物大的三重態激發能，廣泛地用作為磷光化合物的主體材料。

但是，CBP 雖然具有較大的三重態激發能，接收電洞或電子的功能卻不足，因此有驅動電壓增高的問題。因此，作為對於磷光化合物的主體材料的物質要求的是具有較大的三重態激發能，並且容易接受電洞和電子，且可以傳輸電洞和電子的物質（就是說具有雙極性的物質）。

另外，單重態激發能（基態和單重激發態之間的能級差別）因為大於三重態激發能，所以具有較大的三重態激發能的物質也具有較大的單重態激發能。因此，如上所述的具有較大的三重態激發能和雙極性的物質對於將螢光化合物用作發光物質的發光元件也有用。

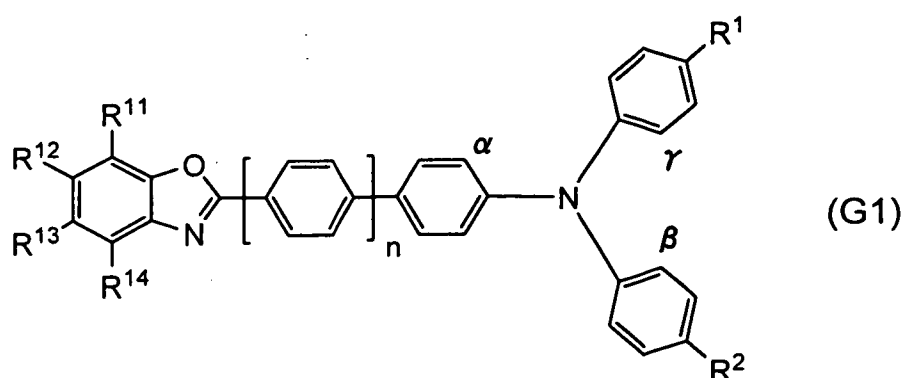
〔非專利文件 1〕M. A. Baldo 等人，Applied Physics Letters，Vol.75，No.1，4-6 頁（1999）

【發明內容】

在此，本發明的目的在於如下：提供新的苯并噁唑衍

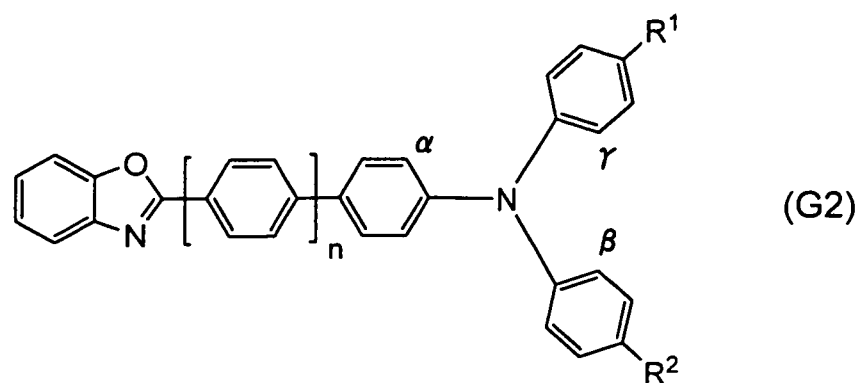
生物，作為激發能量大的物質，尤其是三重態激發能大的物質；提供具有雙極性的新的苯并噁唑衍生物；藉由將新的苯并噁唑衍生物應用於發光元件，提高發光元件的元件特性；提供耗電量低且驅動電壓低的發光裝置及電子裝置。

本發明之一是以下面通式（G1）表示的苯并噁唑衍生物。



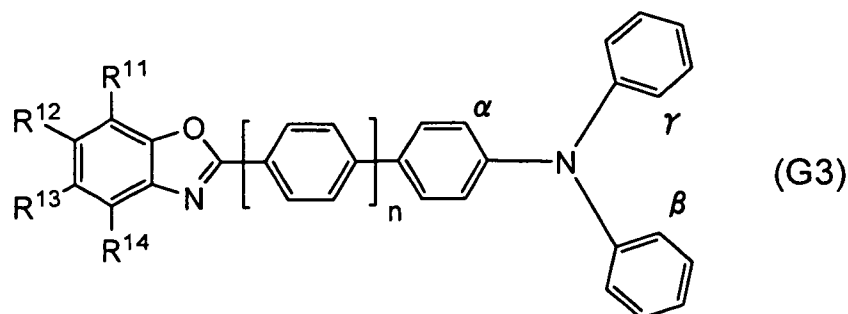
在式中， R^1 和 R^2 分別表示氫原子、具有 1 至 4 的碳原子數的烷基、以及取代或未取代的具有 6 至 13 的碳原子數的芳基中的任一種。注意， R^1 和 R^2 也可以具有螺環結構。另外， R^{11} 至 R^{14} 分別表示氫原子、鹵素、具有 1 至 4 的碳原子數的烷基、以及未取代的具有 6 至 10 的碳原子數的芳基中的任一種。再者， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成呋唑骨架。注意， n 為 0 至 3。

另外，本發明之一是以下面通式（G2）表示的苯并噁唑衍生物。



在式中， R^1 和 R^2 分別表示氫原子、具有 1 至 4 的碳原子數的烷基、取代或未取代的具有 6 至 13 的碳原子數的芳基中的任一種。注意， R^1 和 R^2 可以具有螺環結構。再者， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成咪唑骨架。注意， n 為 0 至 3。

另外，本發明之一是以下面通式 (G3) 表示的苯并咪唑衍生物。



在式中， R^{11} 至 R^{14} 分別表示氫原子、鹵素、具有 1 至 4 的碳原子數的烷基、以及未取代的具有 6 至 10 的碳原子數的芳基中的任一種。再者， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成咪唑骨架。注意， n 為 0 至 3。

注意，上述的本發明的苯并咪唑衍生物因為具有發光性，所以本發明的另外結構是在一對電極之間具有 EL 層的發光元件，在 EL 層中包括上述苯并咪唑衍生物。

另外，本發明的苯并咪唑衍生物具有較大的激發能量

。另外，因為可以傳輸電洞及電子雙方，所以最適合於包括在 EL 層中的發光層的主體材料。因此，本發明的另外結構是在一對電極之間具有 EL 層的發光元件，包含在 EL 層中的發光層包含上述苯并噁唑衍生物和發光物質。

因為本發明的苯并噁唑衍生物具有較大的三重態激發能，所以作為上述發光物質較佳為磷光化合物。藉由採用這種結構，可以獲得發光效率和驅動電壓都優越的發光元件。

本發明的另外結構是使用上述所記載的發光元件而形成的發光裝置。再者，本發明的另外結構是使用發光裝置而形成的電子裝置。

另外，本發明在其範疇內包括上述具有發光元件的發光裝置及具有發光裝置的電子裝置。本說明書中的發光裝置是指圖像顯示裝置、發光裝置或者光源（包括照明設備）。此外，在發光裝置上安裝有例如 FPC（撓性印刷電路，Flexible printed circuit）、TAB（帶式自動焊接，Tape Automated Bonding）帶或 TCP（帶載封裝，Tape Carrier Package）等連接器的模組；在 TAB 帶或 TCP 的前端設置有印刷電路板的模組；或者在發光元件上藉由 COG（玻璃覆晶，Chip On Glass）方式直接安裝有 IC（積體電路）的模組也全都包含在發光裝置中。

藉由本發明，可以獲得激發能量較大，尤其是三重態激發能較大的苯并噁唑衍生物。另外，也可以獲得具有雙極性的苯并噁唑衍生物。再者，藉由使用本發明的苯并噁

唑衍生物形成發光元件，可以形成電流效率高的發光元件。

藉由該發光元件，可以獲得耗電量低且驅動電壓低的發光裝置及電子裝置。

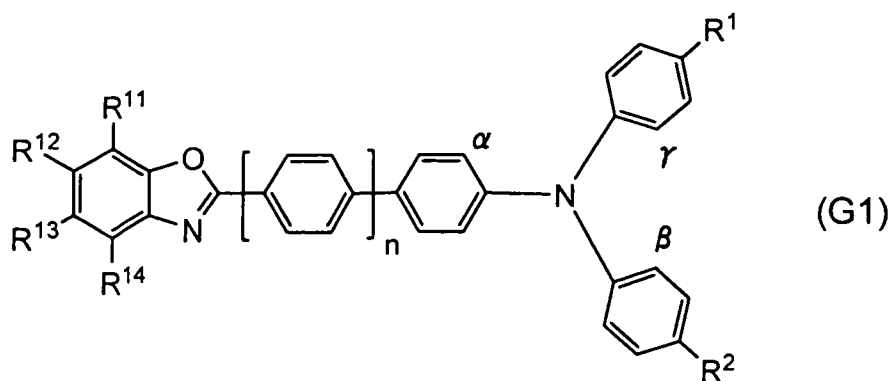
【實施方式】

下面，將參照圖式詳細地說明本發明的實施方式。但是，本發明不侷限於以下說明，可以理解一個事實就是其方式和詳細內容在不脫離本發明的宗旨及其範圍下可以被變換為各種各樣的形式。因此，本發明不應該被解釋為僅限定在以下所示的實施方式所記載的內容中。

實施方式 1

在本實施方式 1 中對本發明的苯并噁唑衍生物進行說明。

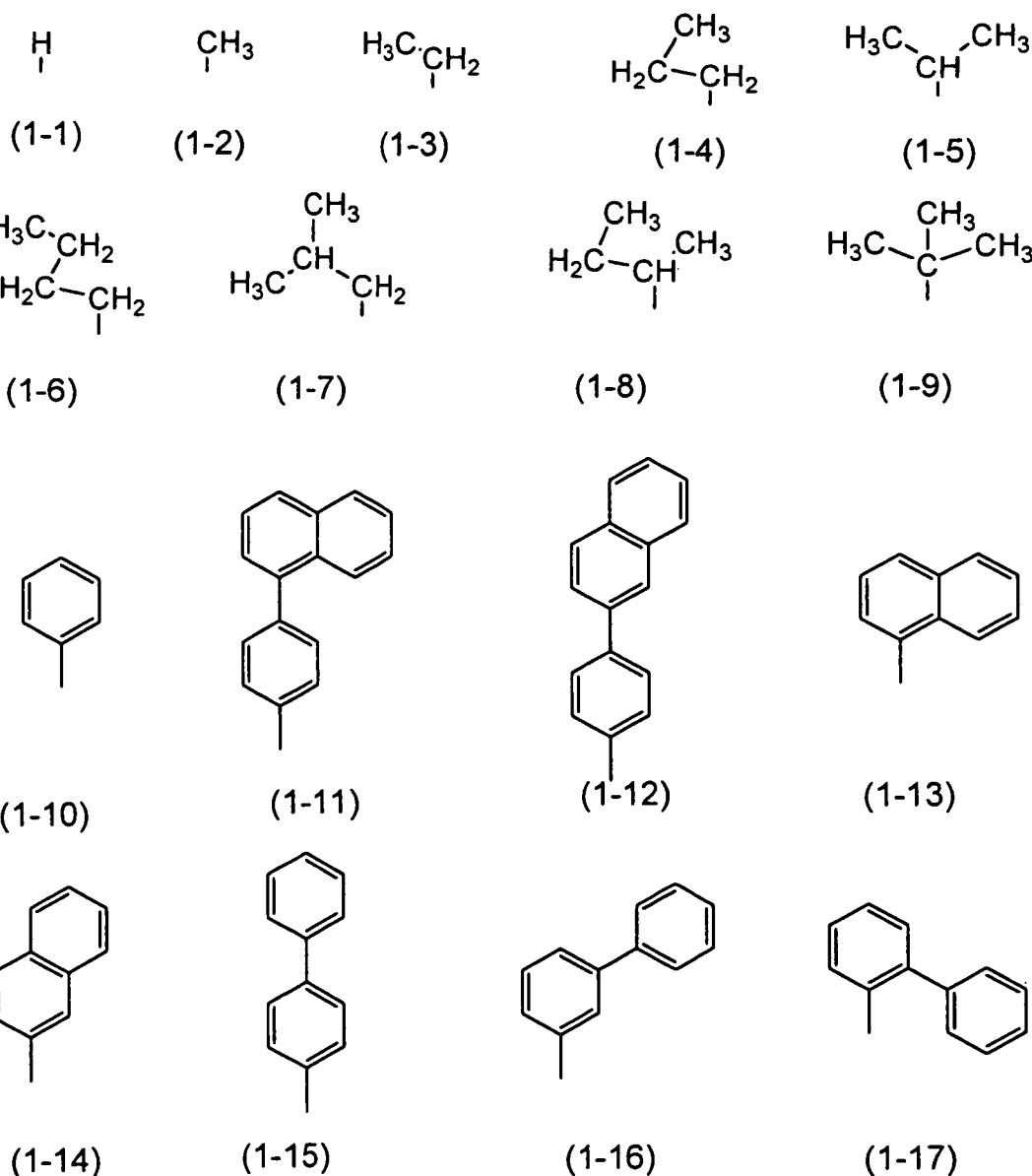
本發明的苯并噁唑衍生物是以通式 (G1) 表示的苯并噁唑衍生物。

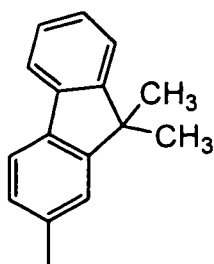


在式中， R^1 和 R^2 分別表示氫原子、碳原子數為 1 至 4 的烷基、取代或未取代的碳原子數為 6 至 13 的芳基。注

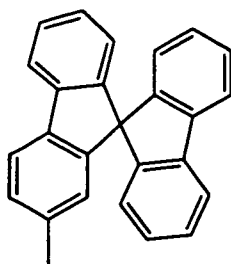
意，被取代的芳基的取代基也可以彼此鍵合而形成環，並且該環結構可以為螺環結構。另外， R^{11} 至 R^{14} 分別表示氫原子、鹵素、碳原子數為 1 至 4 的烷基、未取代的碳原子數為 6 至 10 的芳基中的任一種。再者， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成呋唑骨架。注意， n 為 0 至 3。

注意，作為通式 (G1) 中的 R^1 、 R^2 的具體結構，可以舉出結構式 (1-1) 至結構式 (1-25) 表示的取代基。

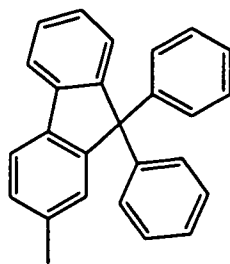




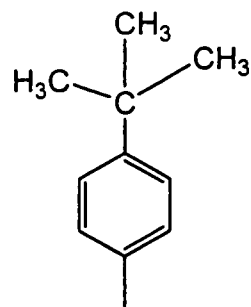
(1-18)



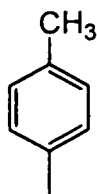
(1-19)



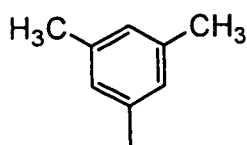
(1-20)



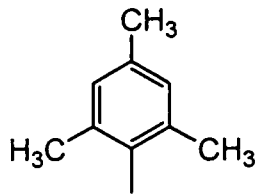
(1-21)



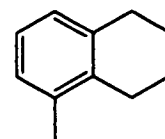
(1-22)



(1-23)



(1-24)



(1-25)

另外，作為通式 (G1) 中的 R^{11} 至 R^{14} 的具體結構，
可以舉出結構式 (2-1) 至結構式 (2-16) 表示的取代基。



(2-1)



(2-2)



(2-3)



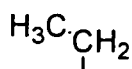
(2-4)



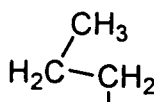
(2-5)



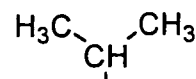
(2-6)



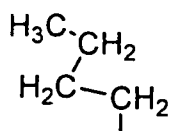
(2-7)



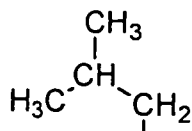
(2-8)



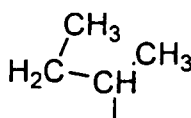
(2-9)



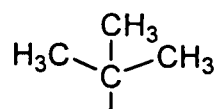
(2-10)



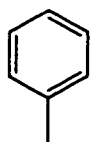
(2-11)



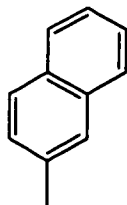
(2-12)



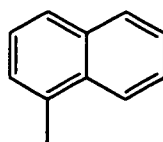
(2-13)



(2-14)



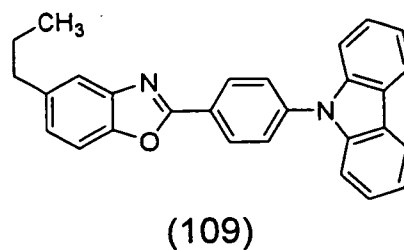
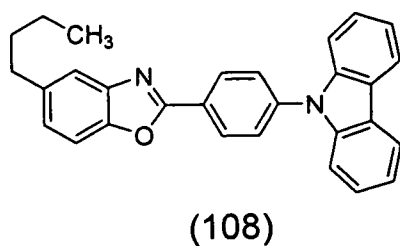
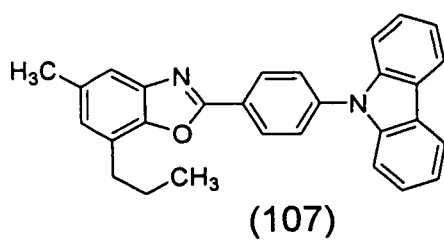
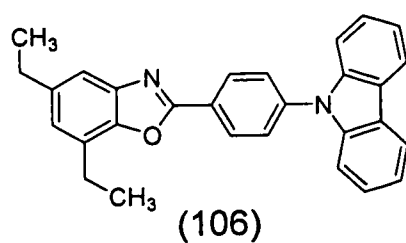
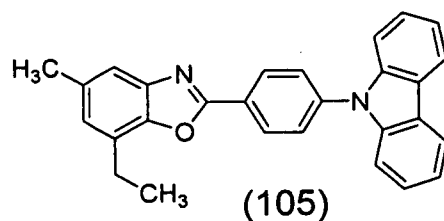
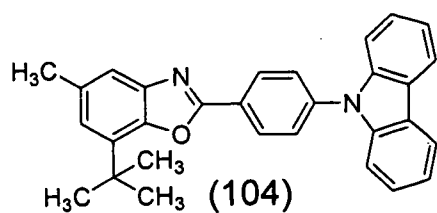
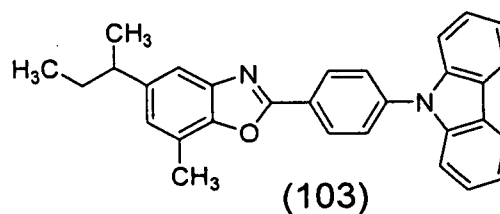
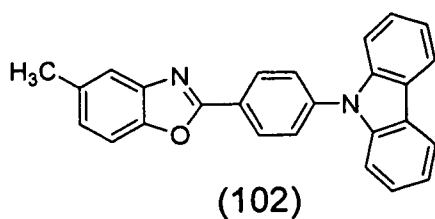
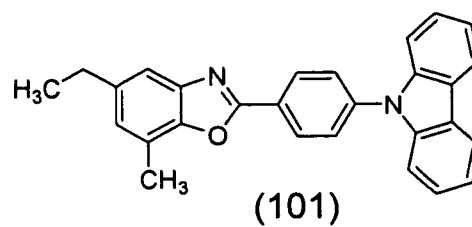
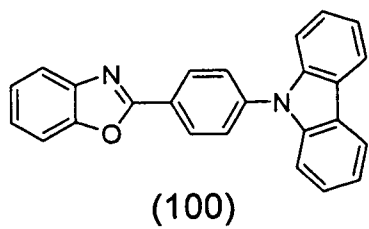
(2-15)

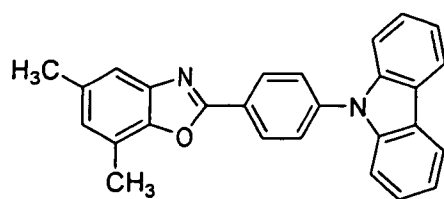


(2-16)

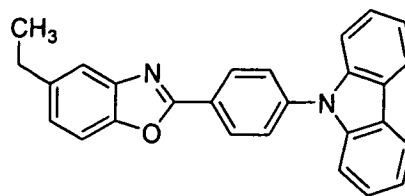
作為通式 (1) 表示的本發明的苯并噁唑衍生物的具

體例子，可以舉出結構式（100）至結構式（433）所示的
苯并呋唑衍生物。但是，本發明不侷限於這些。

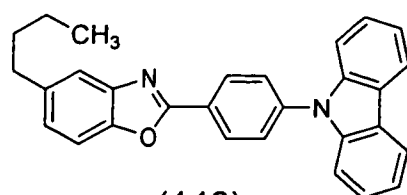




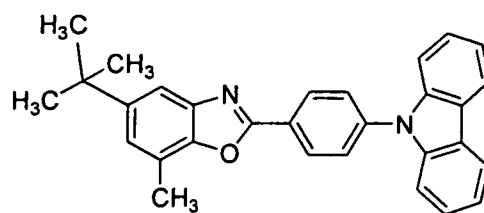
(110)



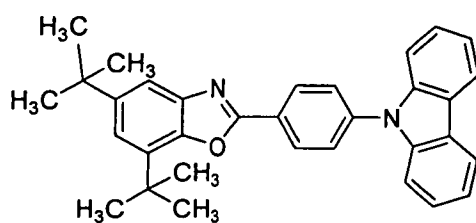
(111)



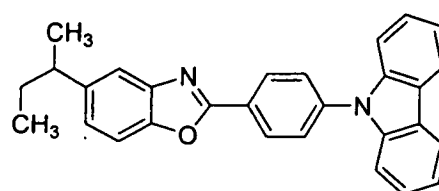
(112)



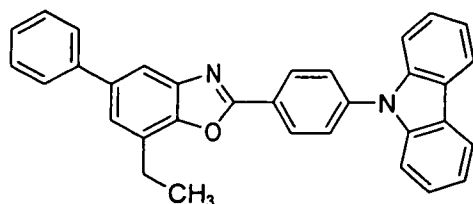
(113)



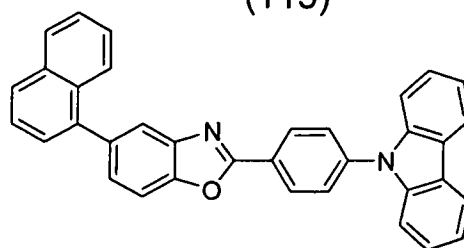
(114)



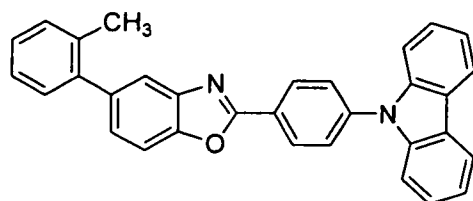
(115)



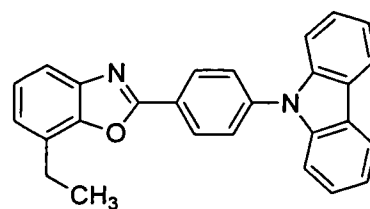
(116)



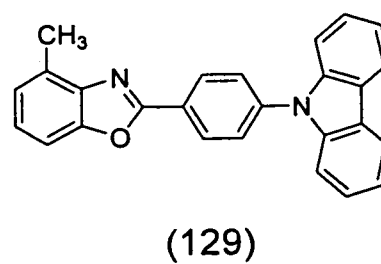
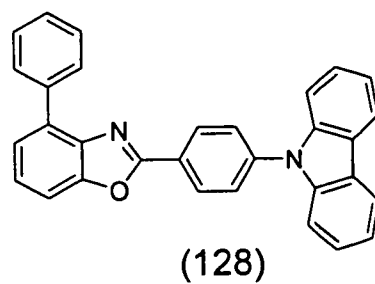
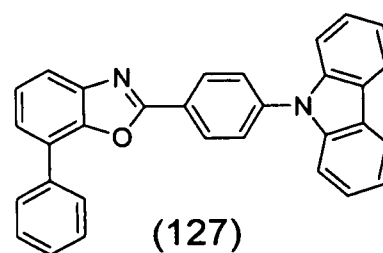
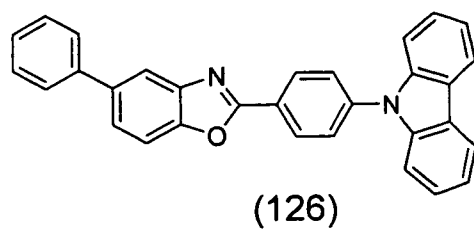
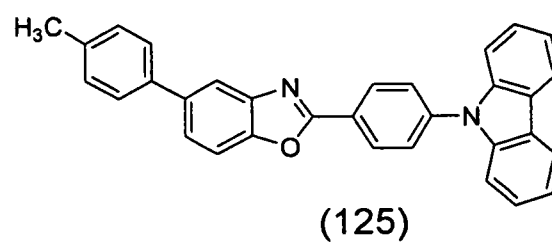
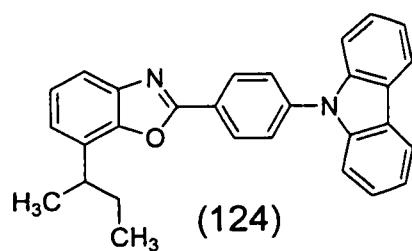
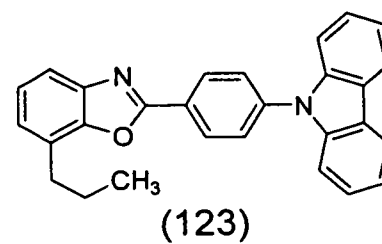
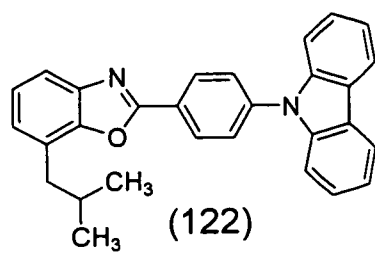
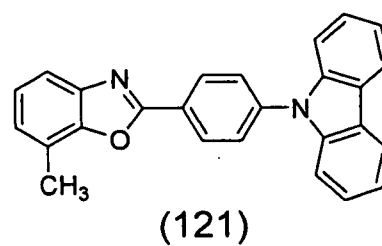
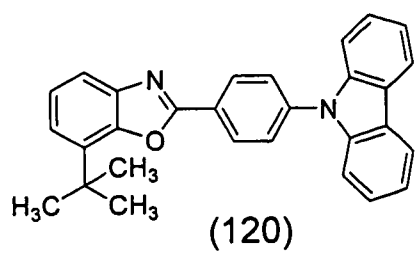
(117)

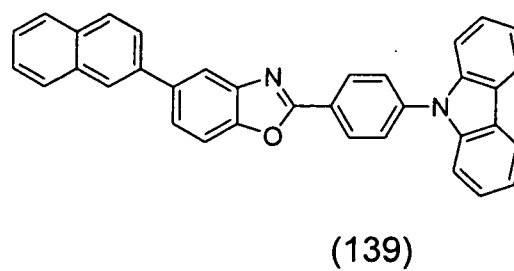
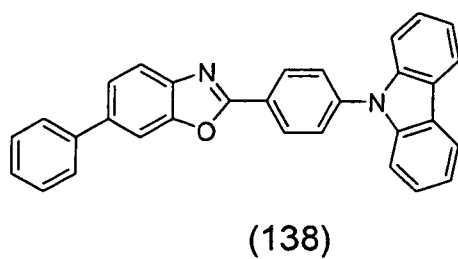
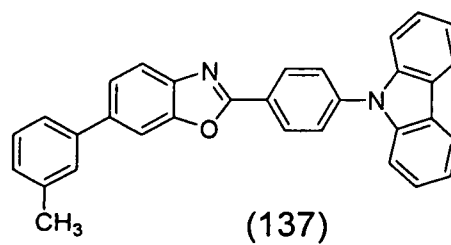
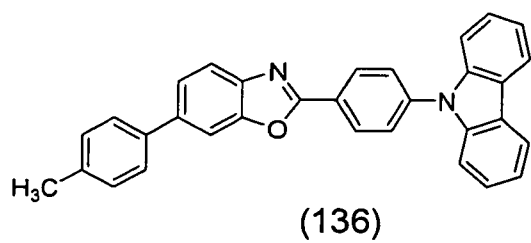
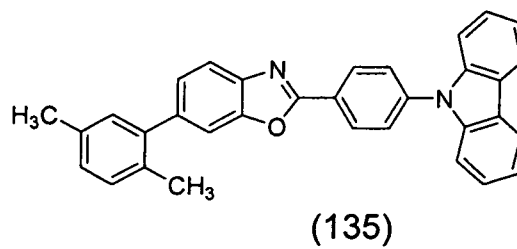
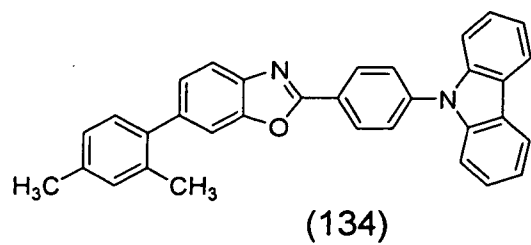
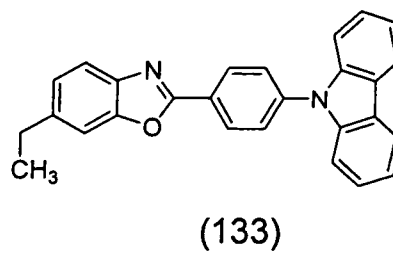
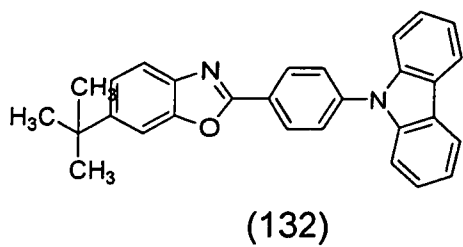
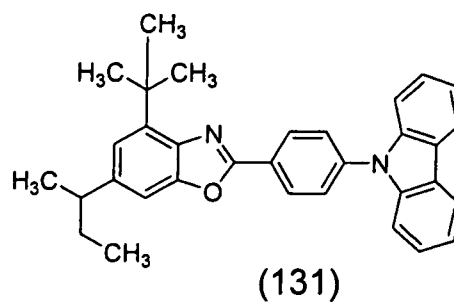
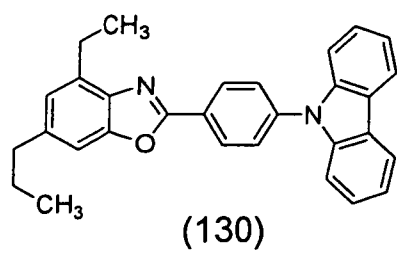


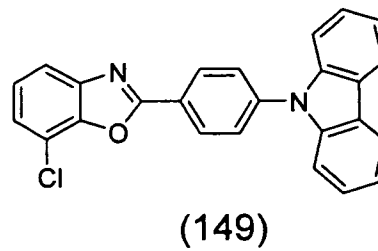
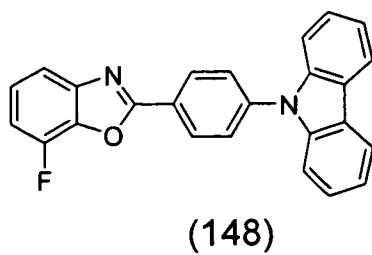
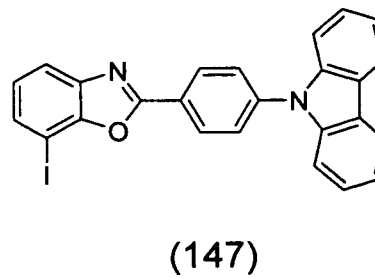
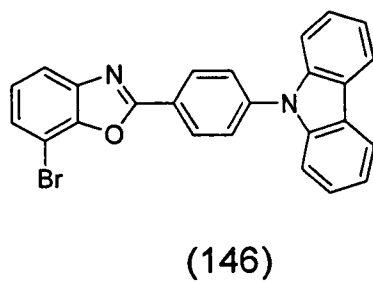
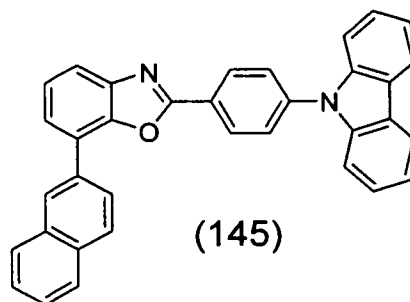
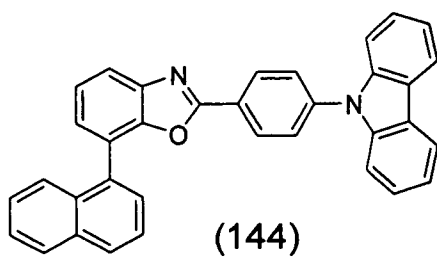
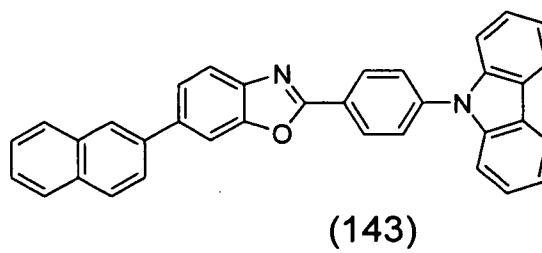
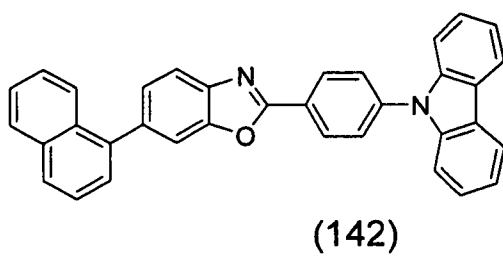
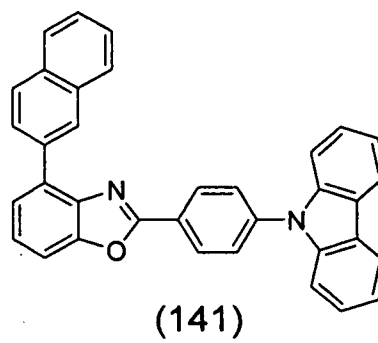
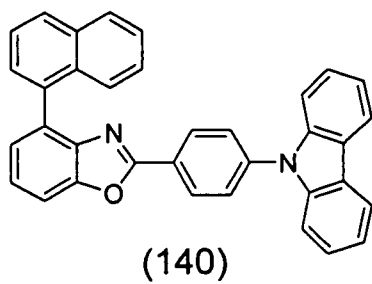
(118)

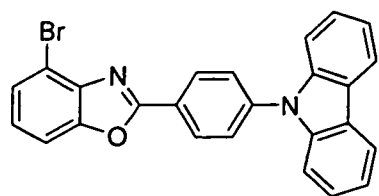


(119)

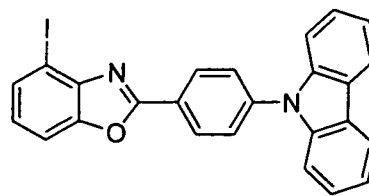




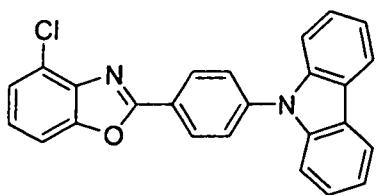




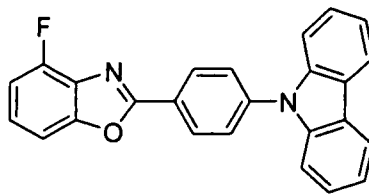
(150)



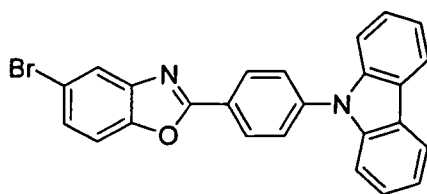
(151)



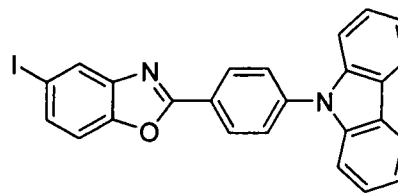
(152)



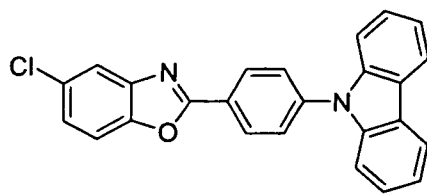
(153)



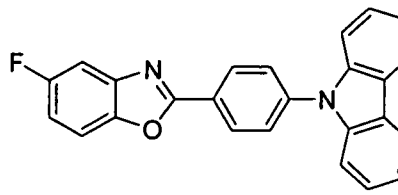
(154)



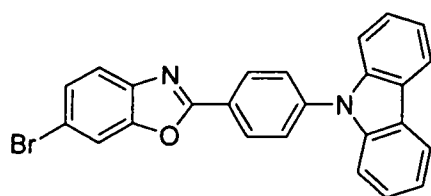
(155)



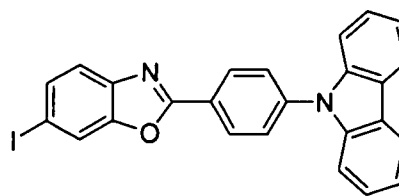
(156)



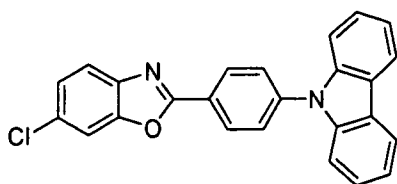
(157)



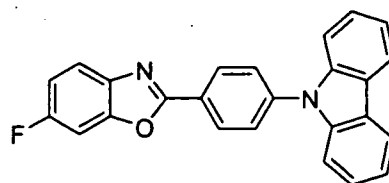
(158)



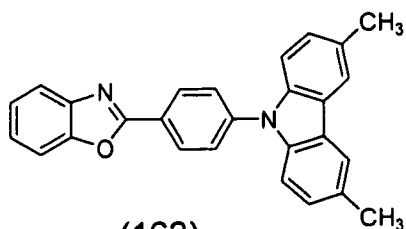
(159)



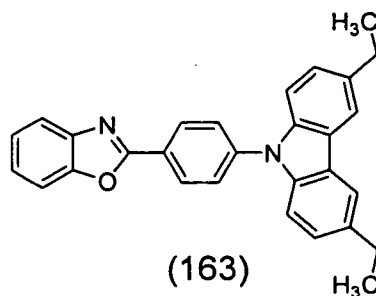
(160)



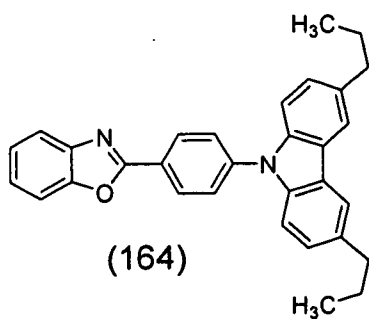
(161)



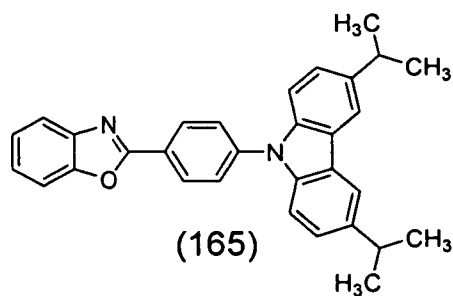
(162)



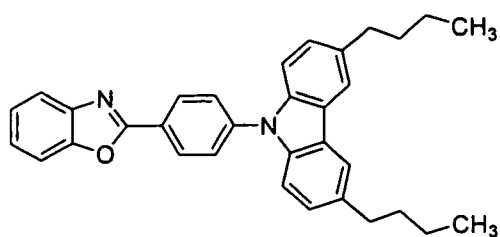
(163)



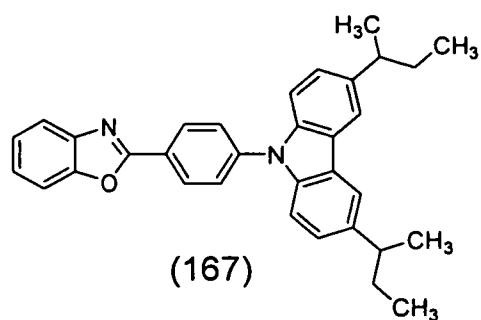
(164)



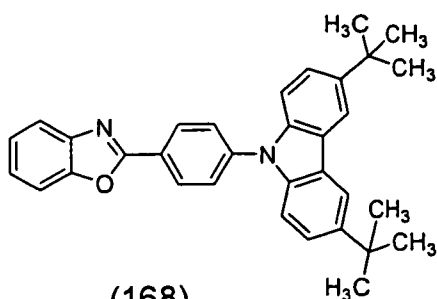
(165)



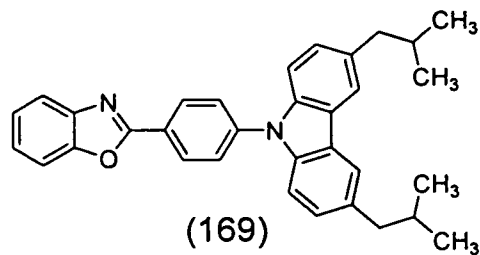
(166)



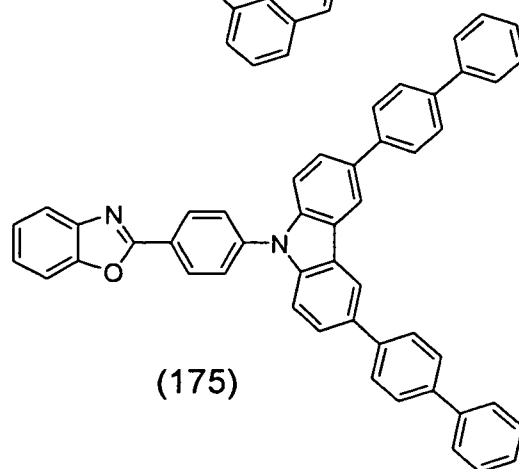
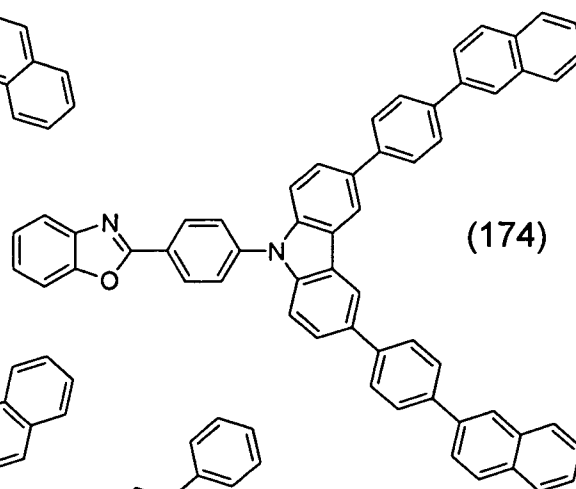
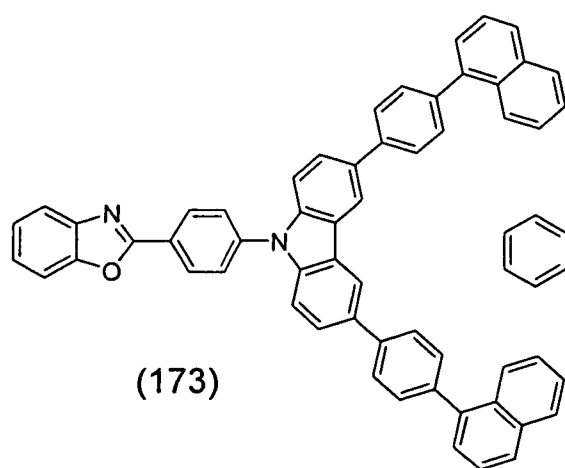
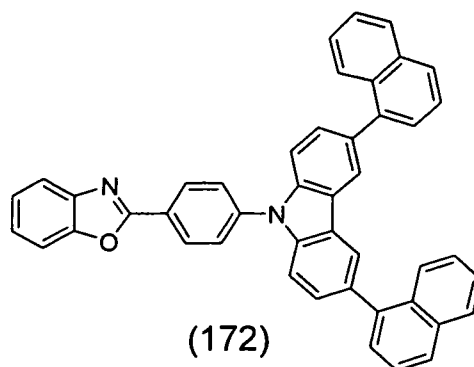
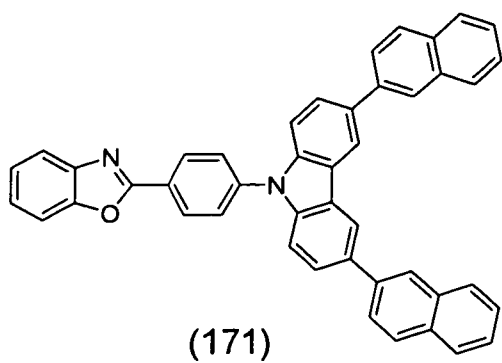
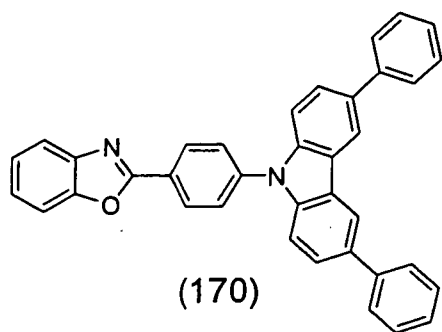
(167)

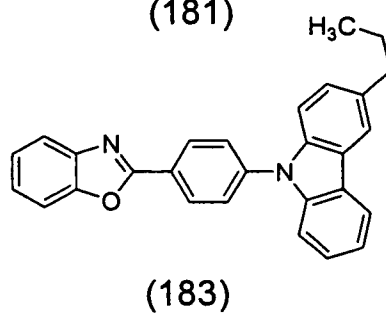
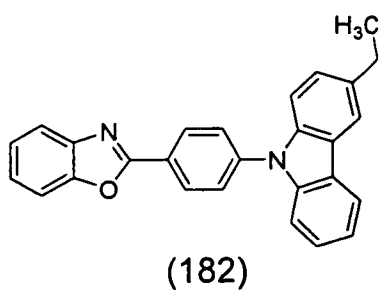
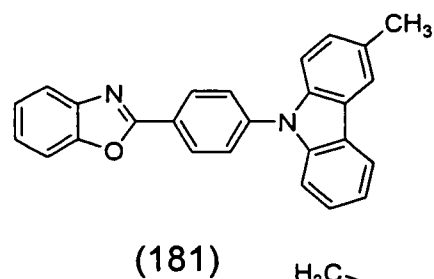
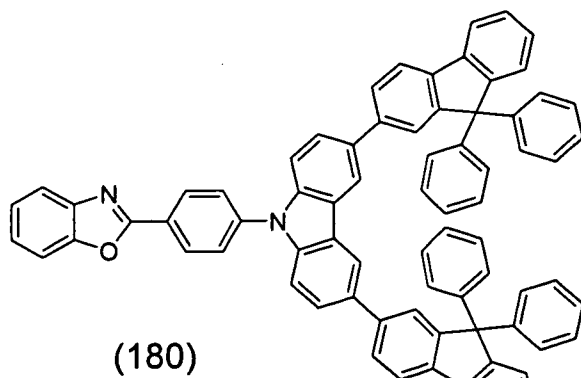
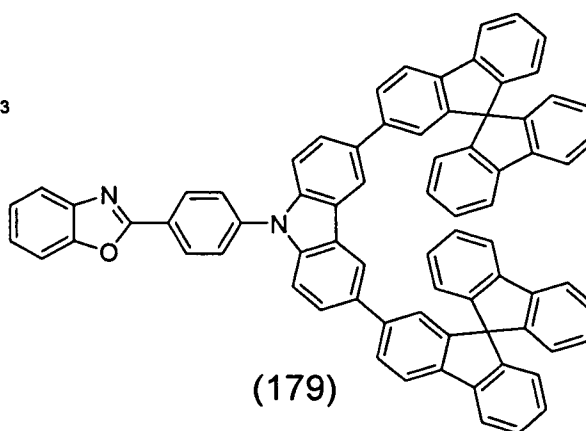
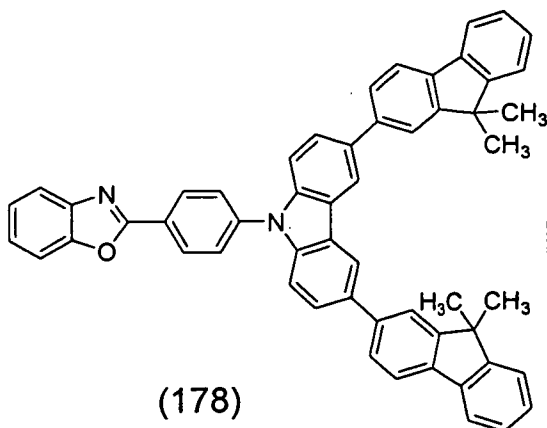
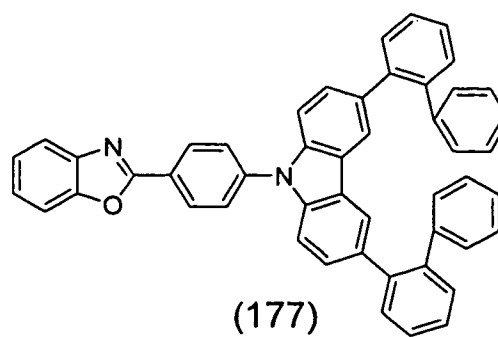
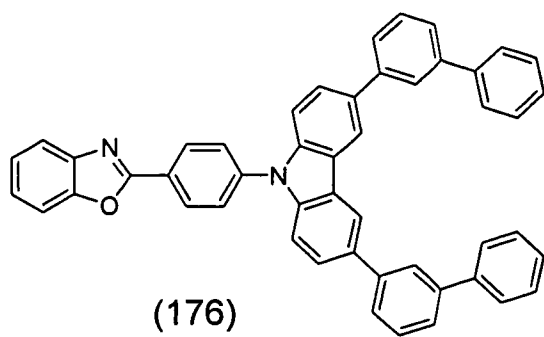


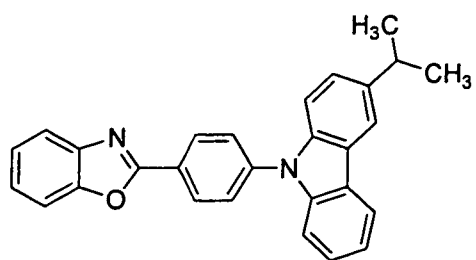
(168)



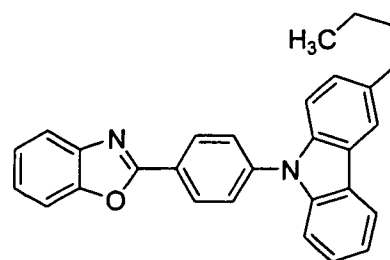
(169)



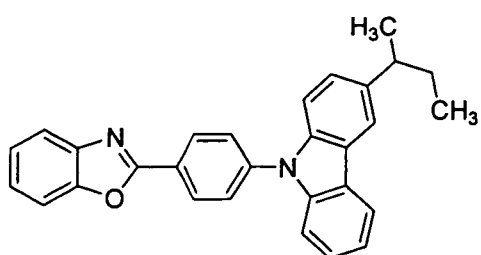




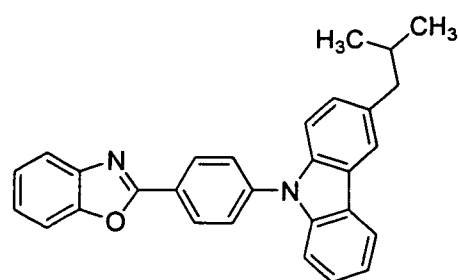
(184)



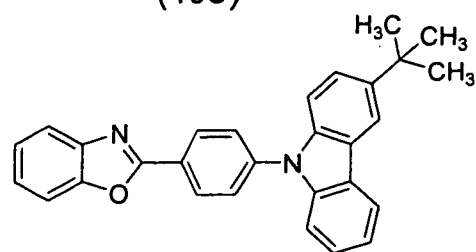
(185)



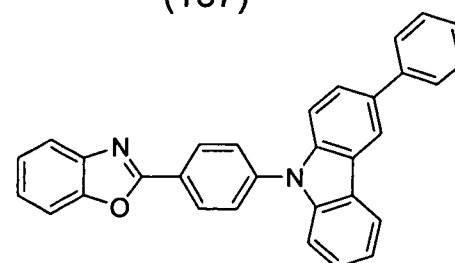
(186)



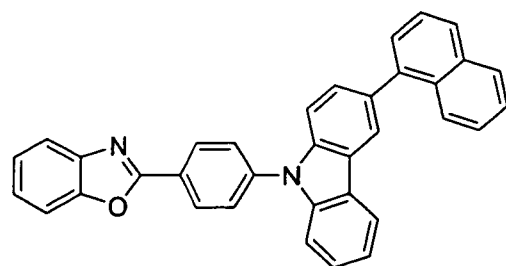
(187)



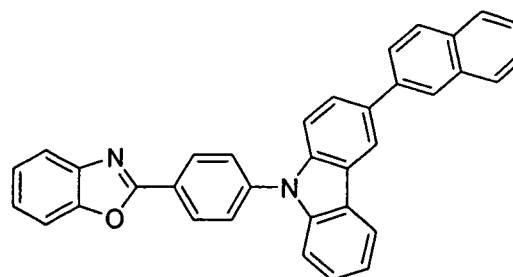
(188)



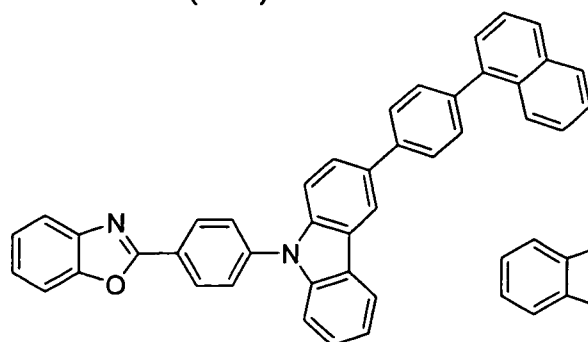
(189)



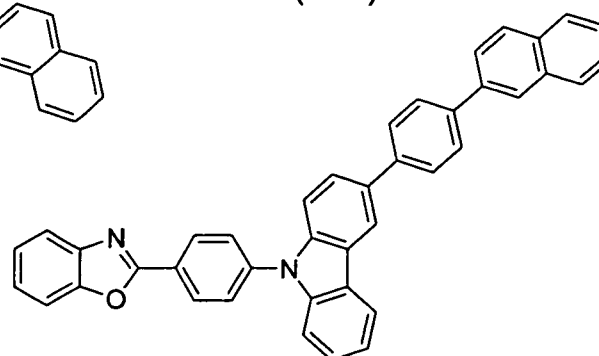
(190)



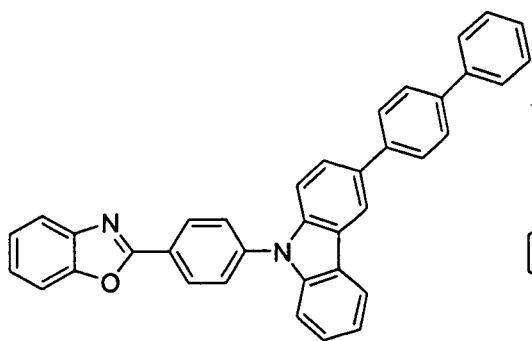
(191)



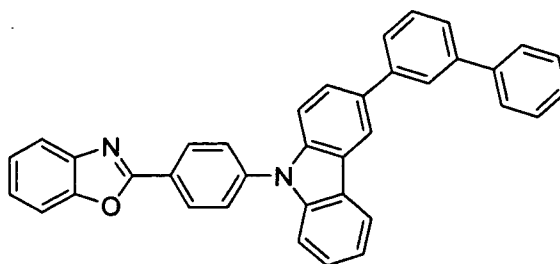
(192)



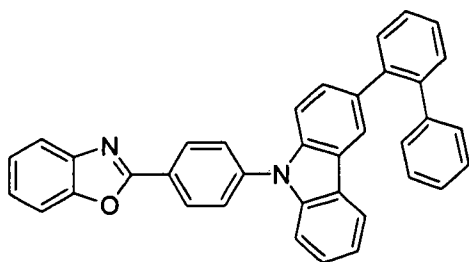
(193)



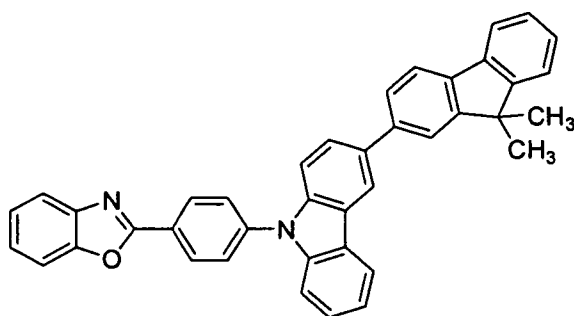
(194)



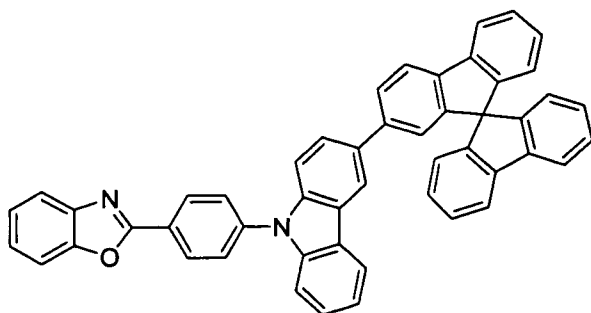
(195)



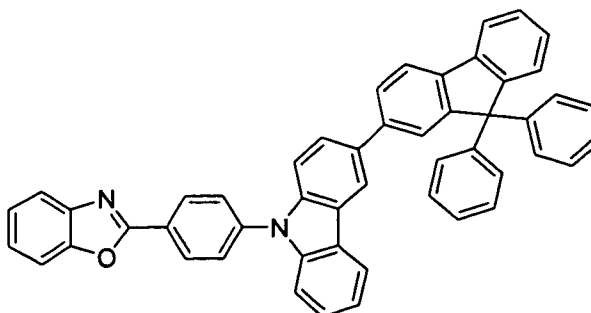
(196)



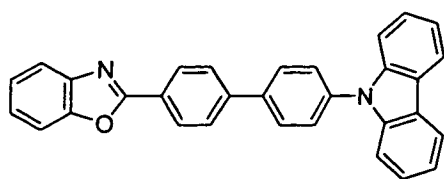
(197)



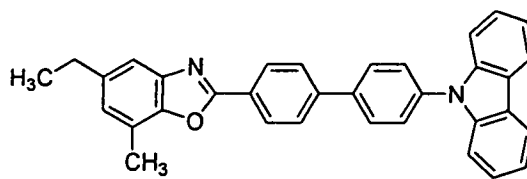
(198)



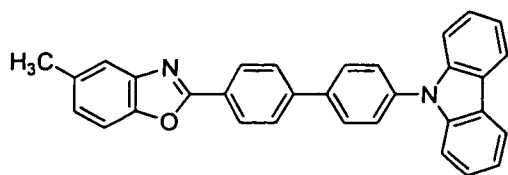
(199)



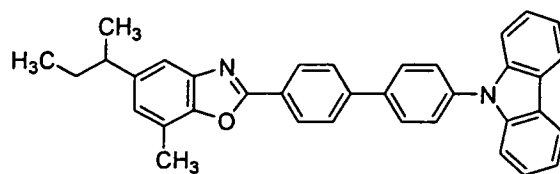
(200)



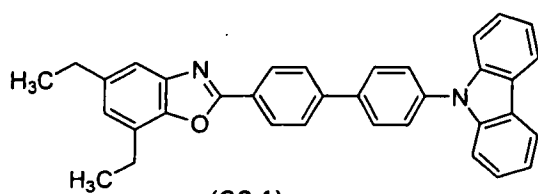
(201)



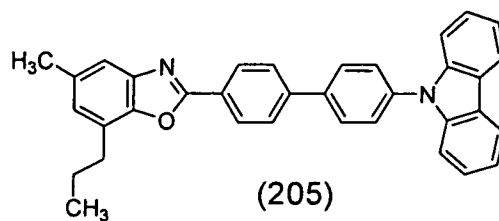
(202)



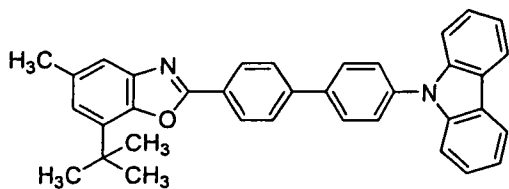
(203)



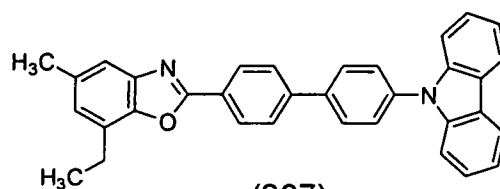
(204)



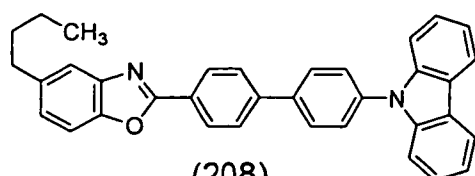
(205)



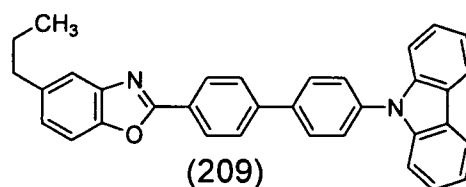
(206)



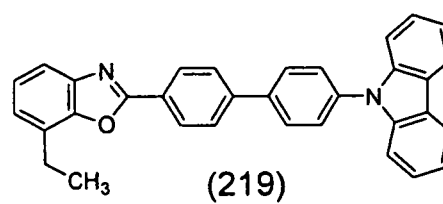
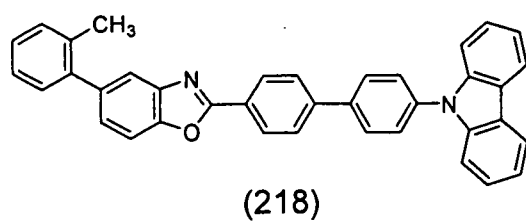
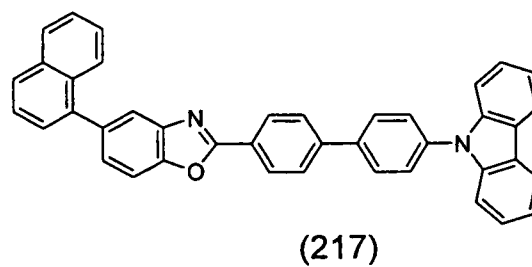
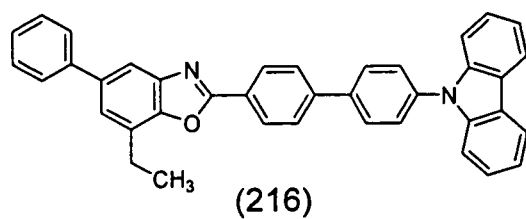
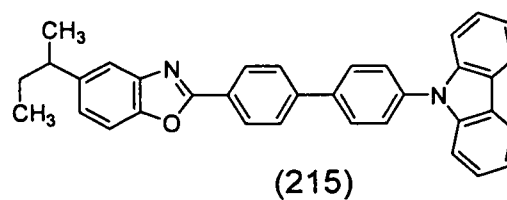
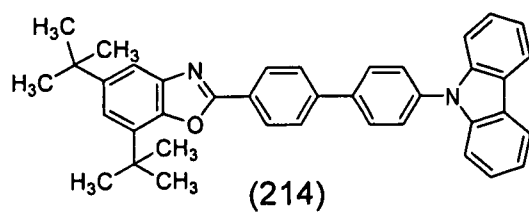
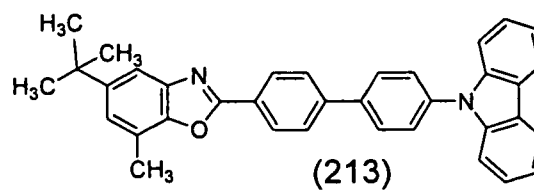
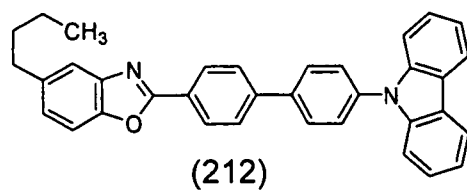
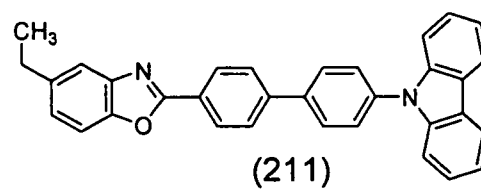
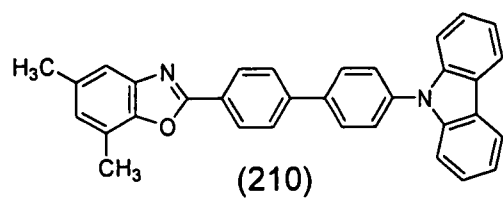
(207)

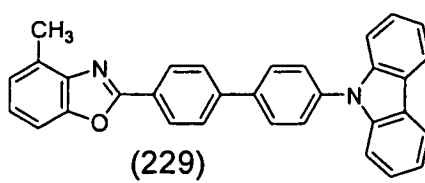
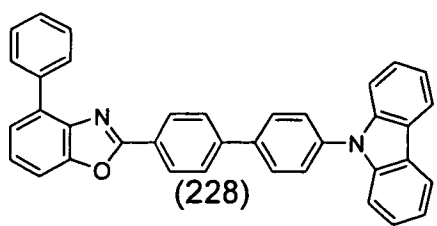
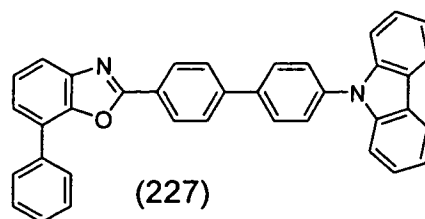
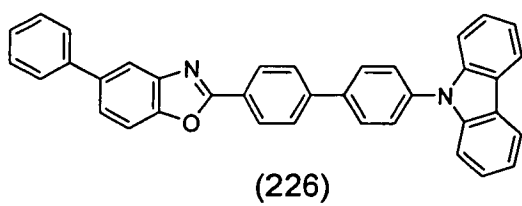
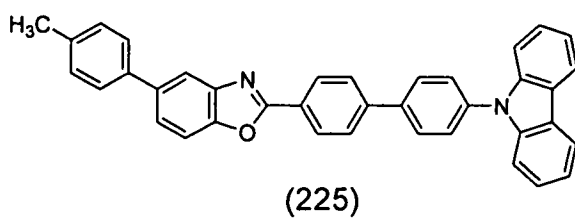
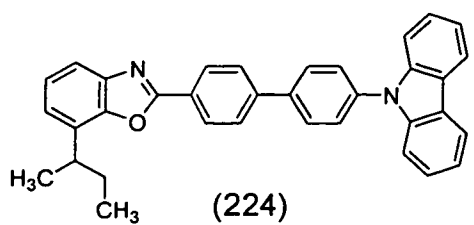
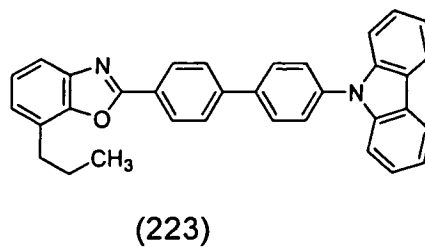
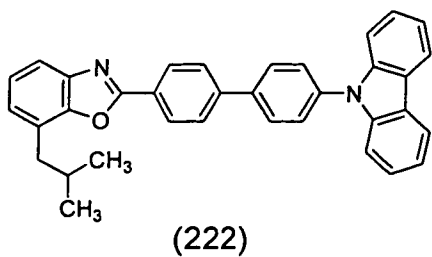
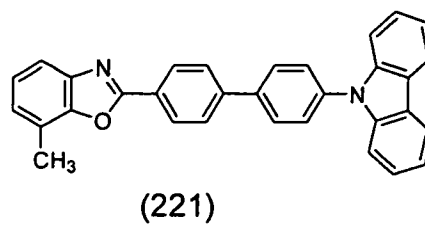
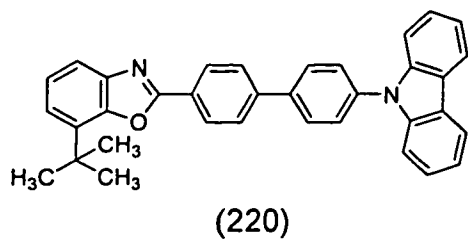


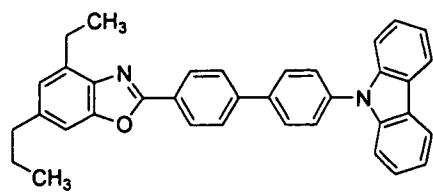
(208)



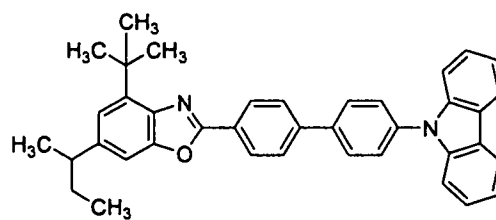
(209)



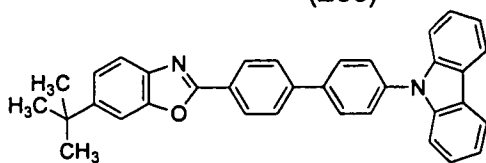




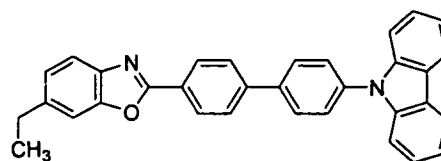
(230)



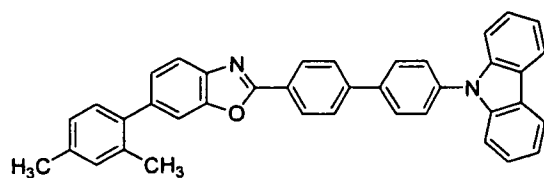
(231)



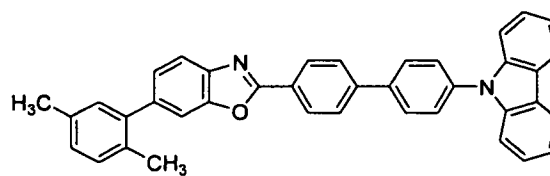
(232)



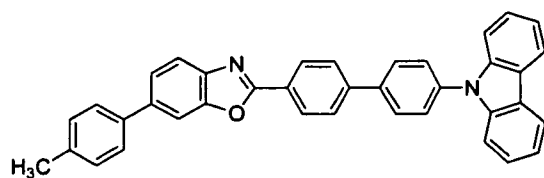
(233)



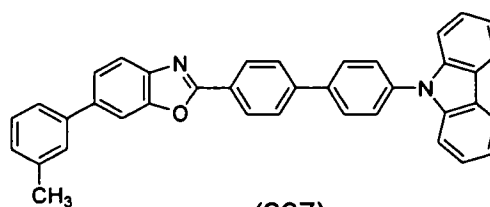
(234)



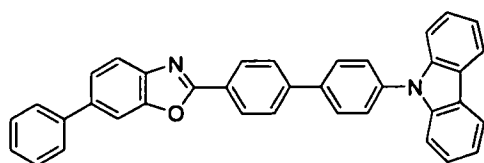
(235)



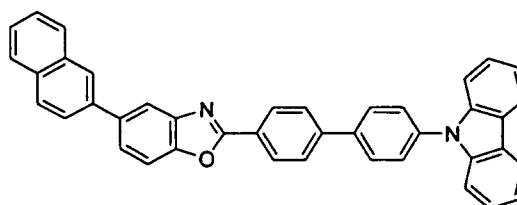
(236)



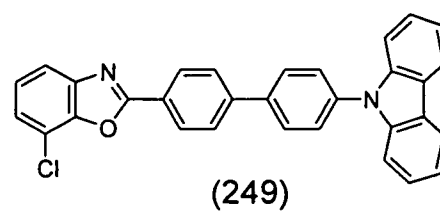
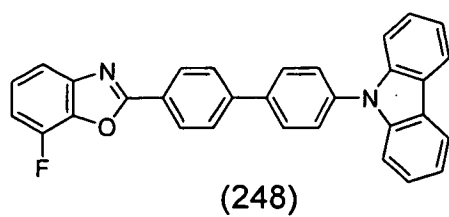
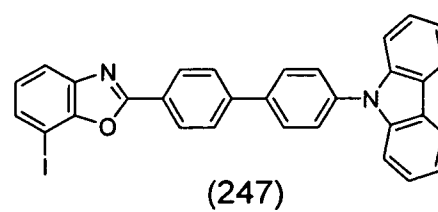
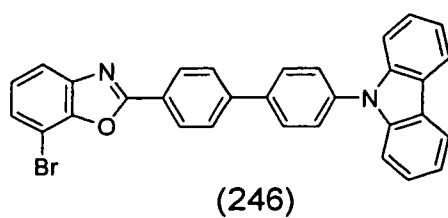
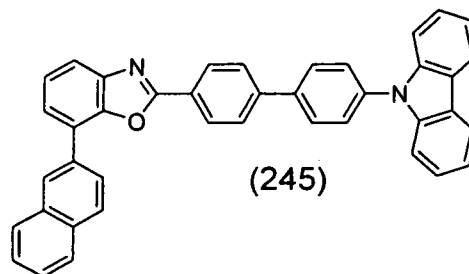
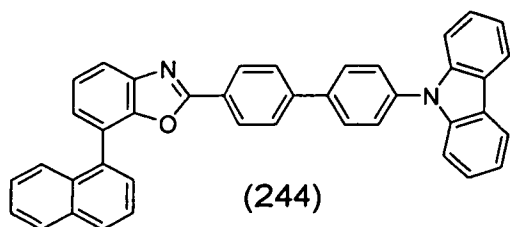
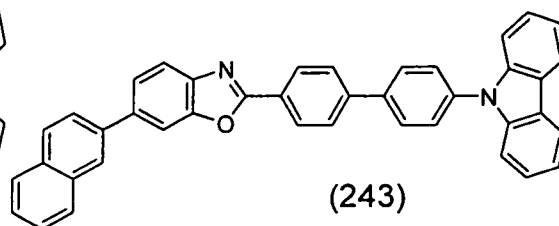
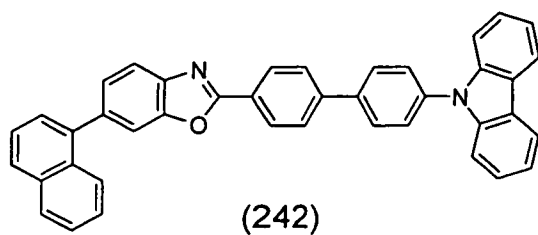
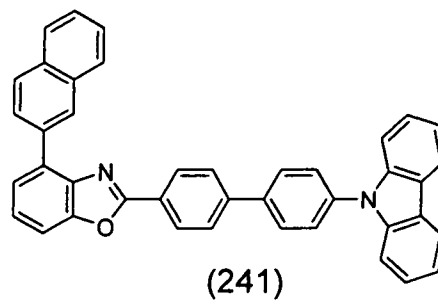
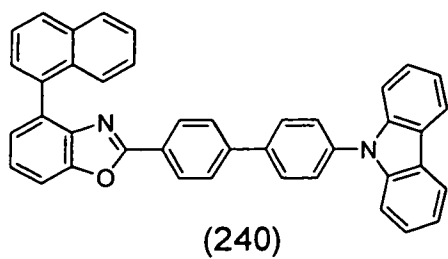
(237)

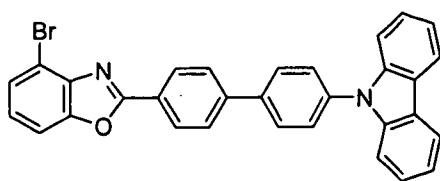


(238)

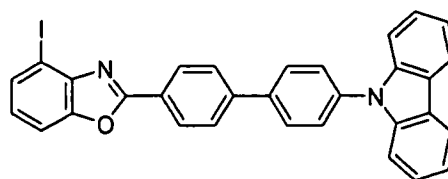


(239)

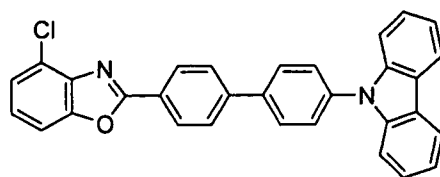




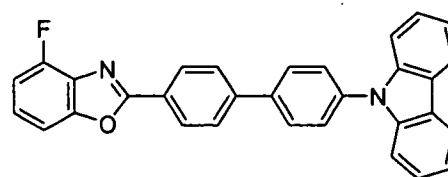
(250)



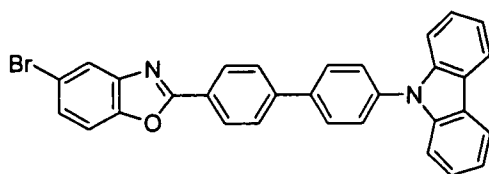
(251)



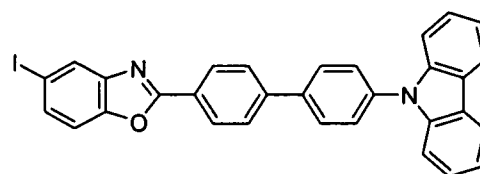
(252)



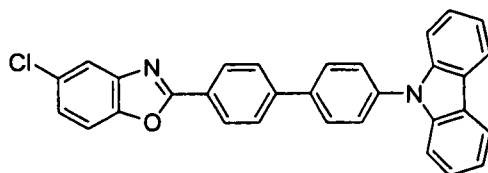
(253)



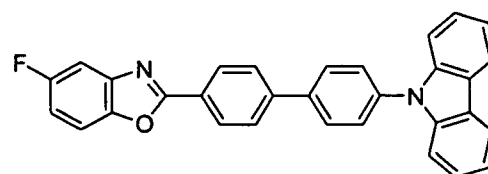
(254)



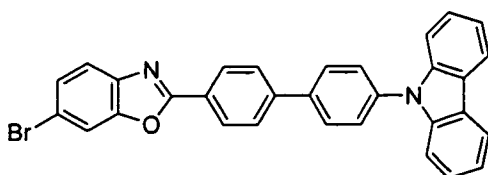
(255)



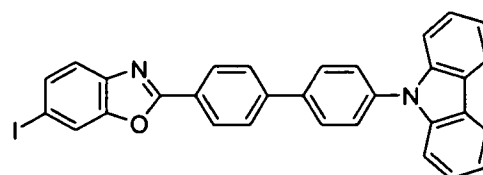
(256)



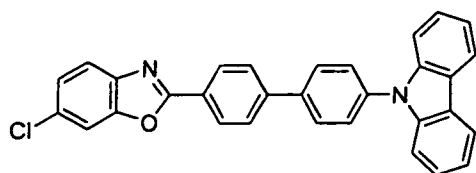
(257)



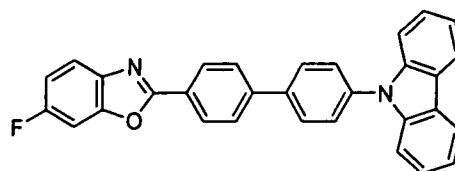
(258)



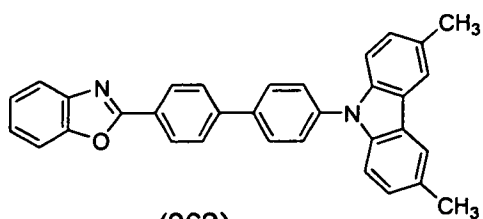
(259)



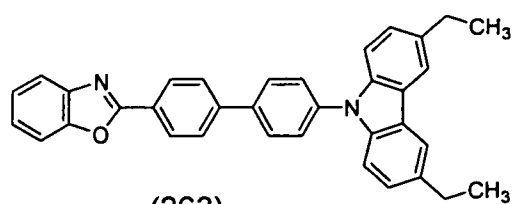
(260)



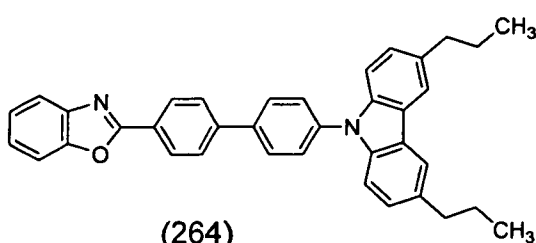
(261)



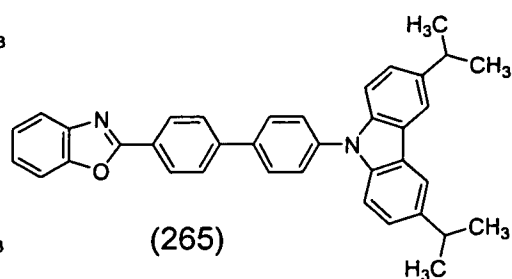
(262)



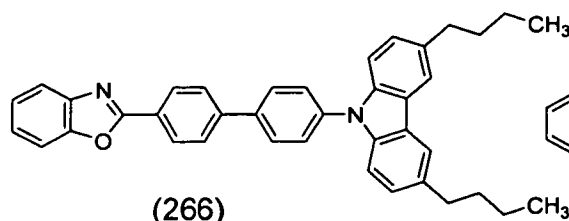
(263)



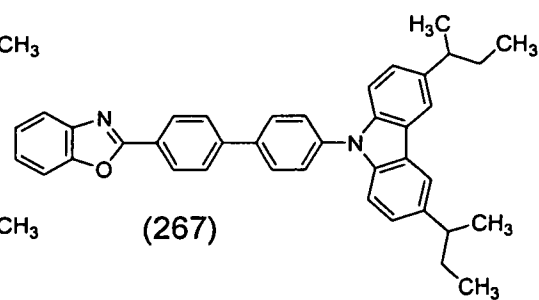
(264)



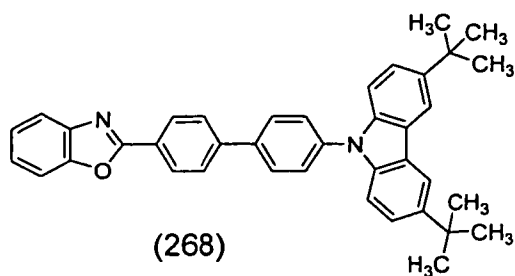
(265)



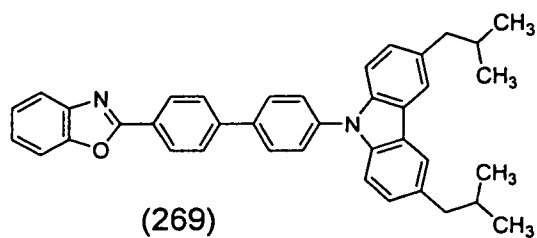
(266)



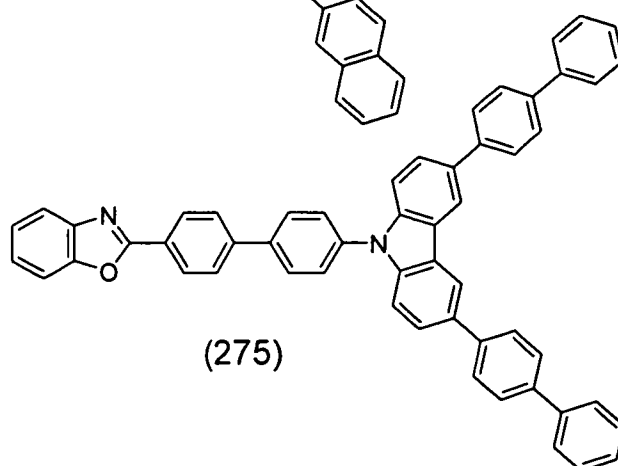
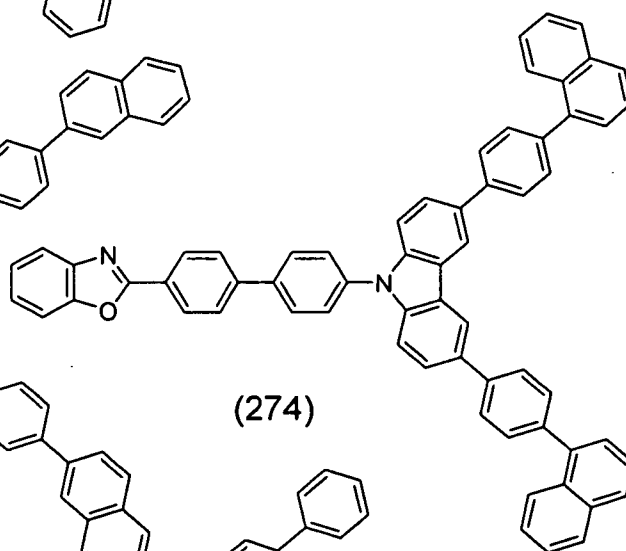
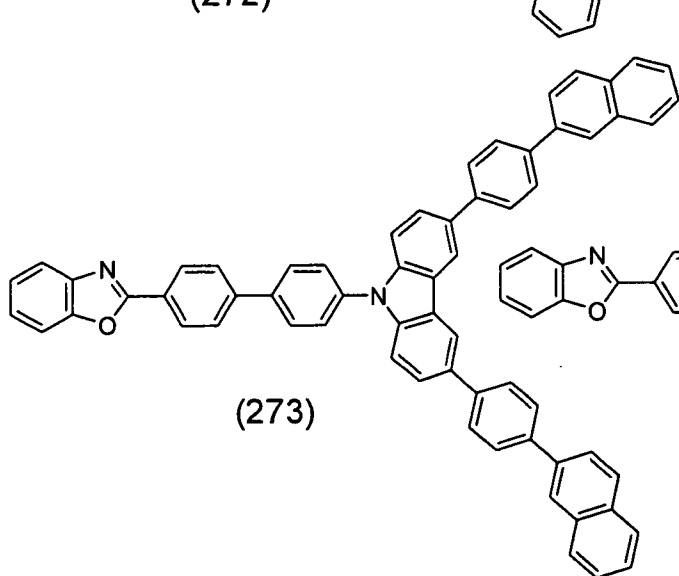
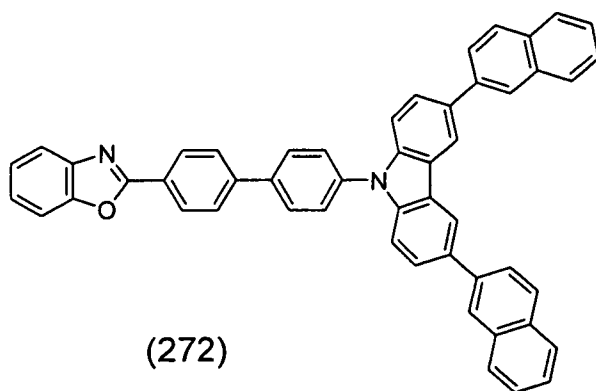
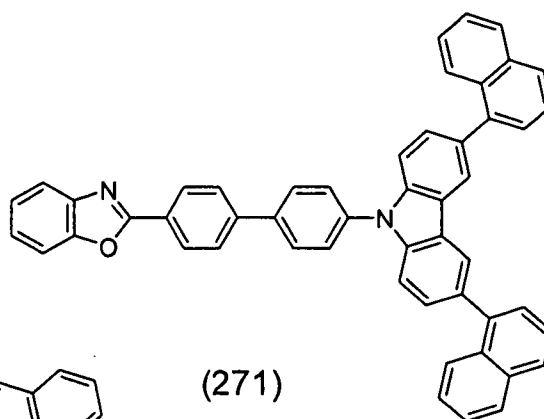
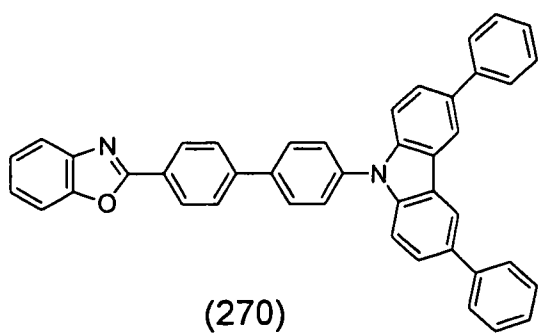
(267)

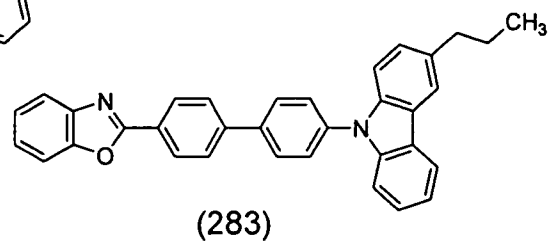
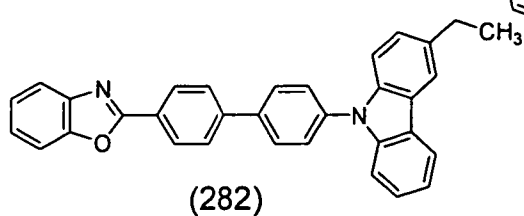
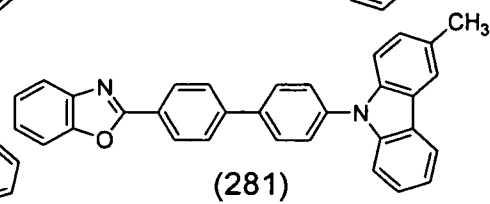
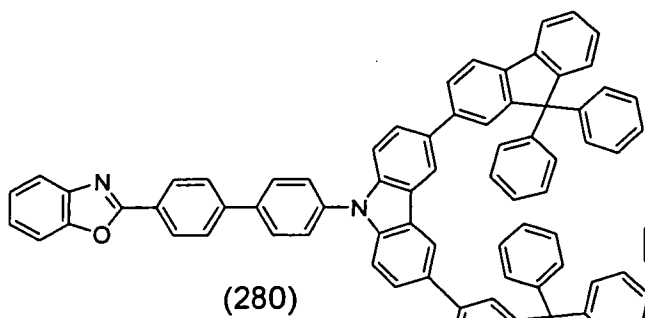
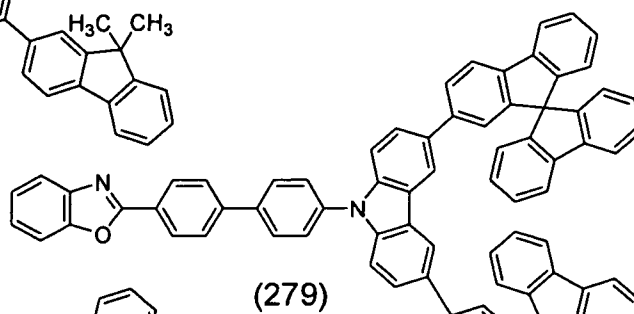
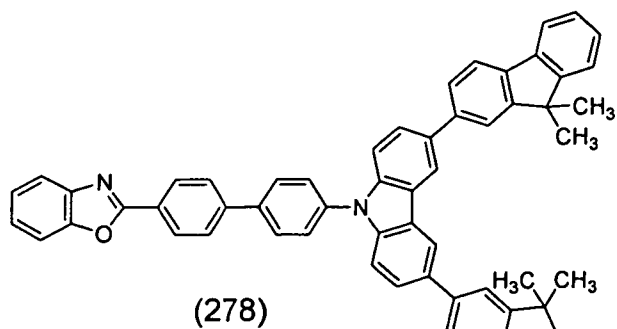
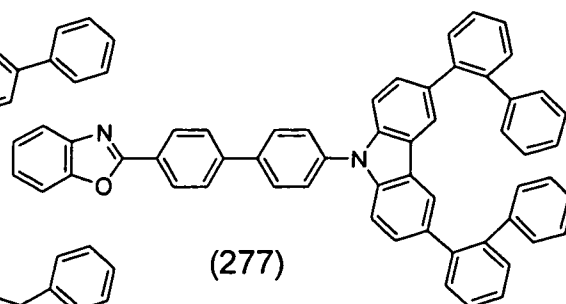
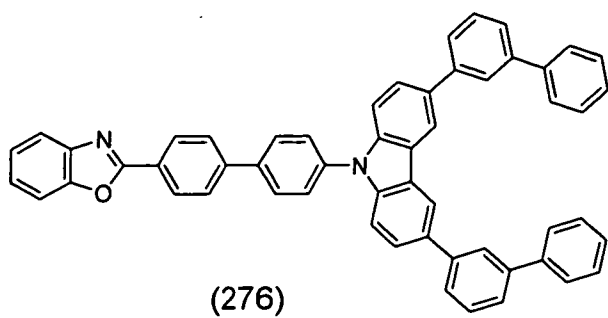


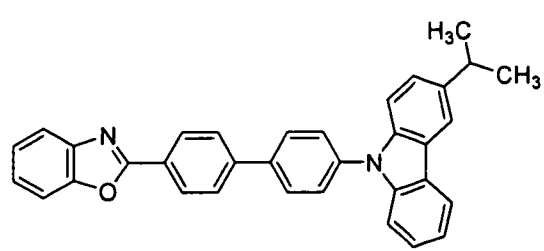
(268)



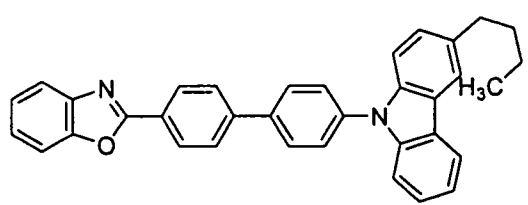
(269)



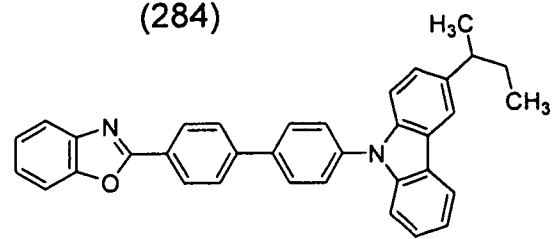




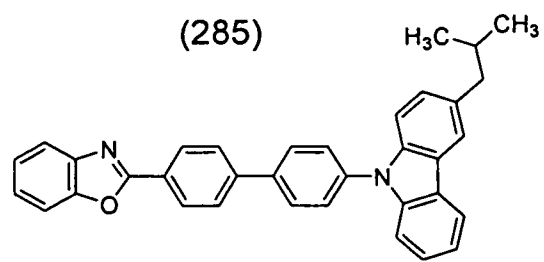
(284)



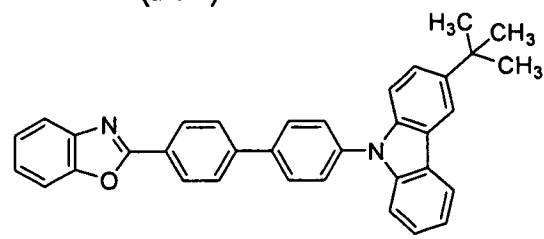
(285)



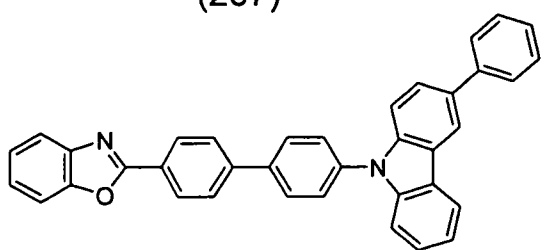
(286)



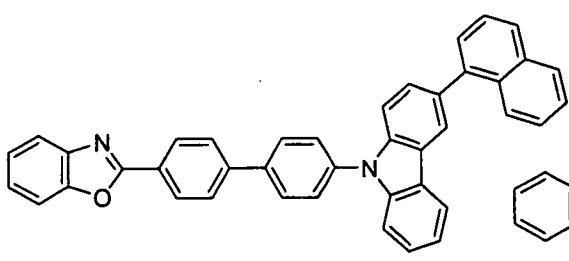
(287)



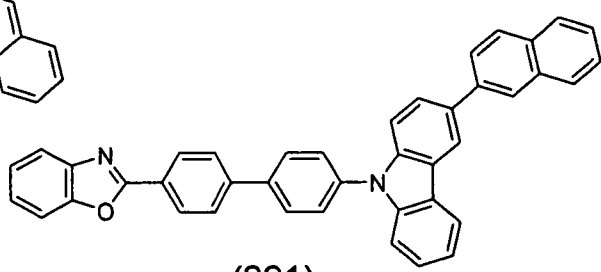
(288)



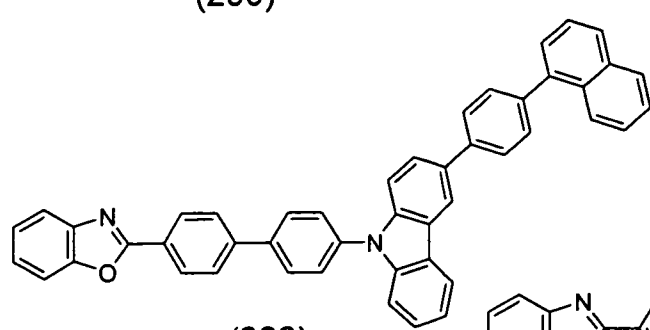
(289)



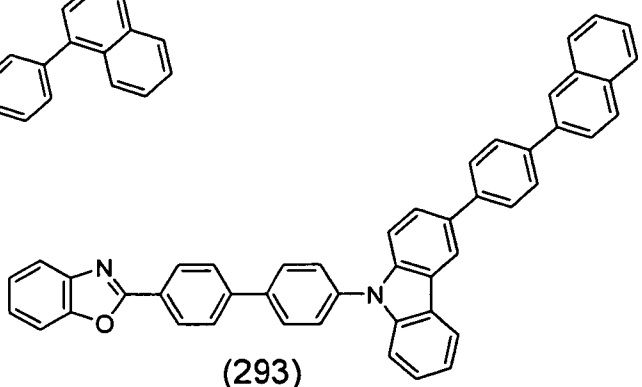
(290)



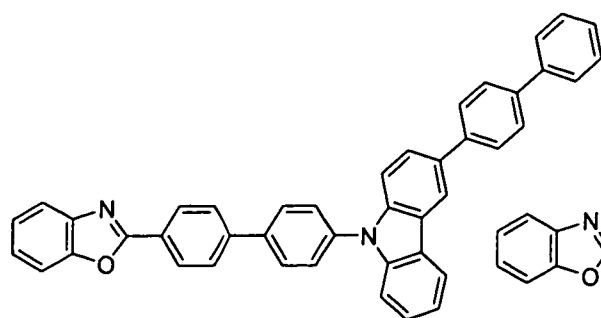
(291)



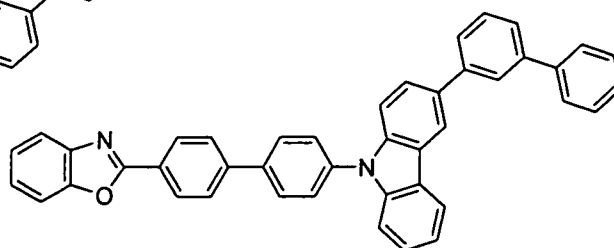
(292)



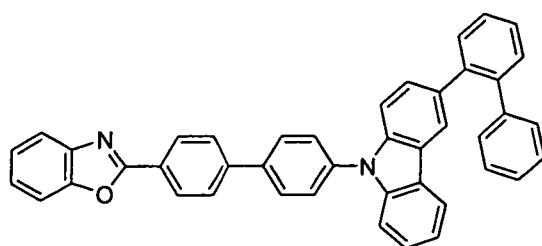
(293)



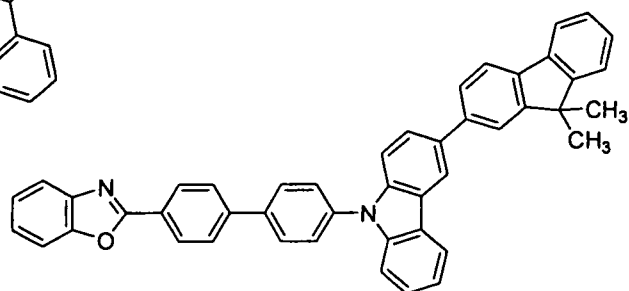
(294)



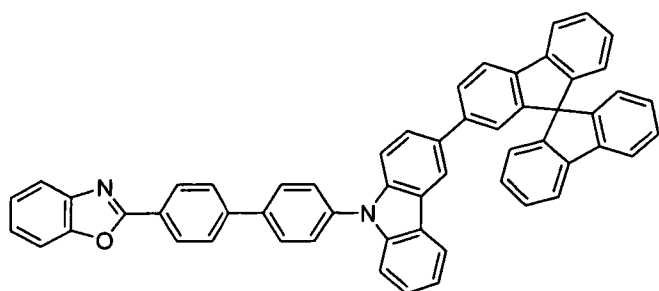
(295)



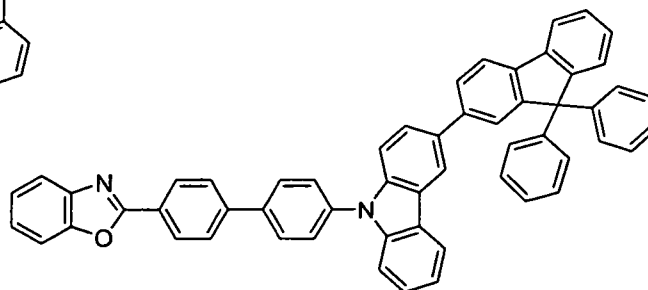
(296)



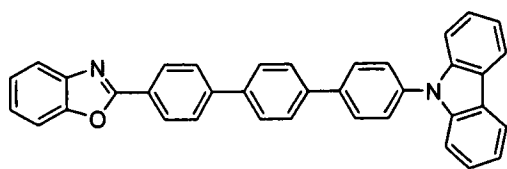
(297)



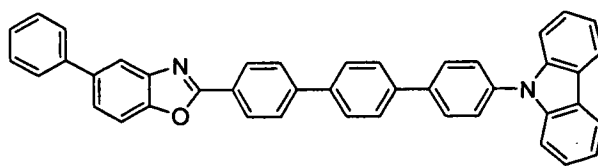
(298)



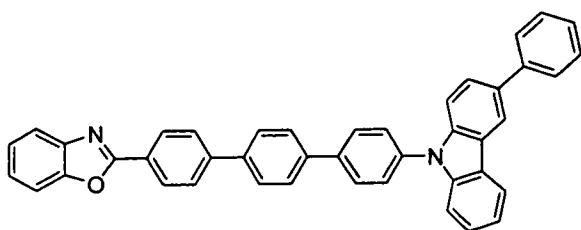
(299)



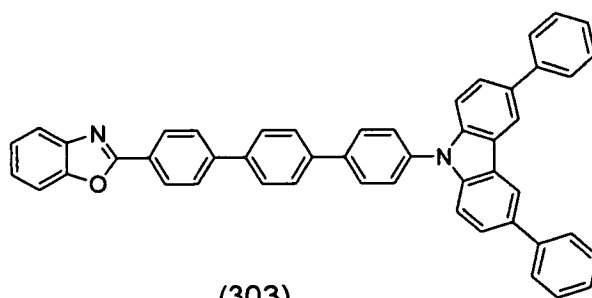
(300)



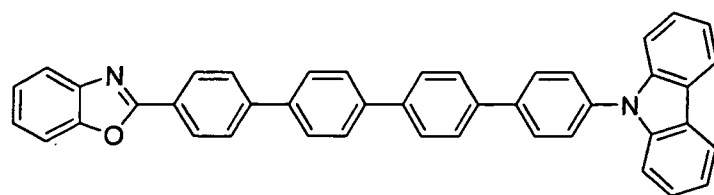
(301)



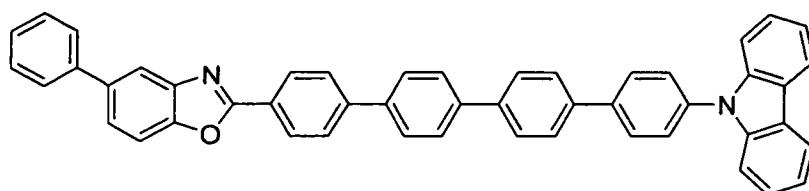
(302)



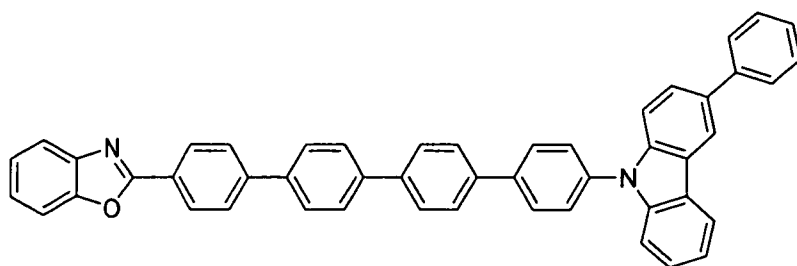
(303)



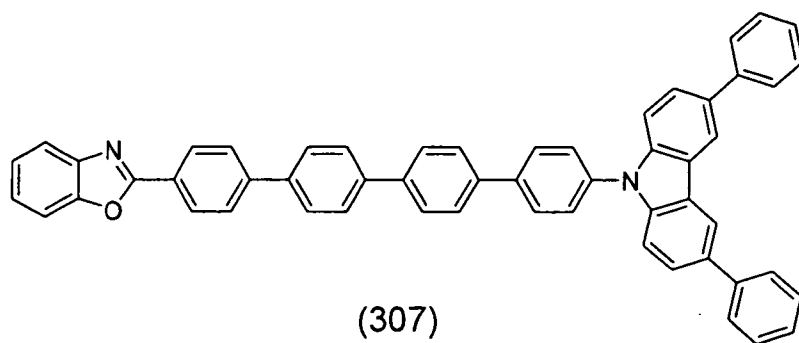
(304)



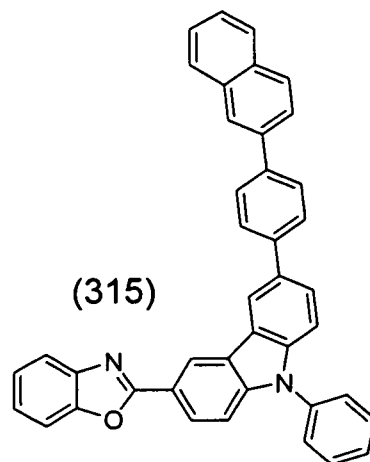
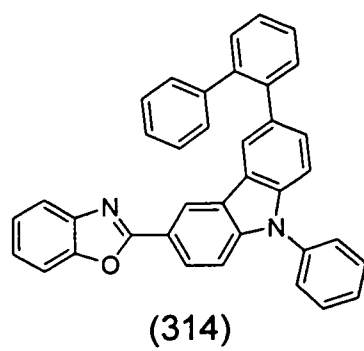
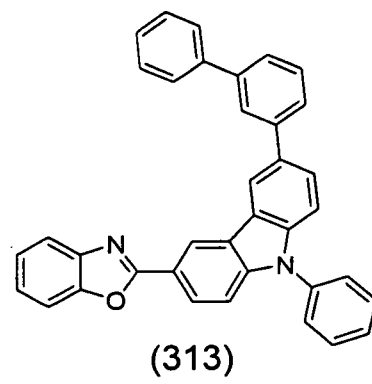
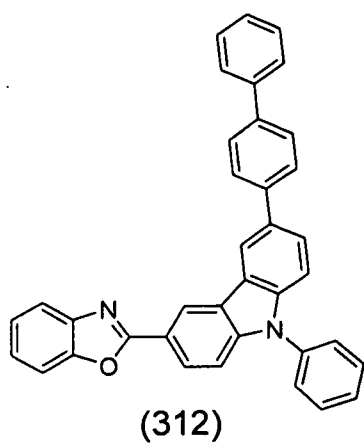
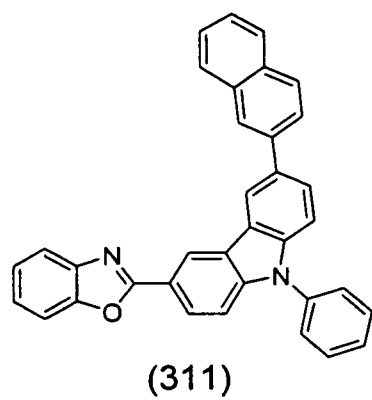
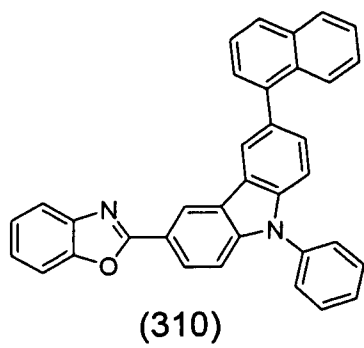
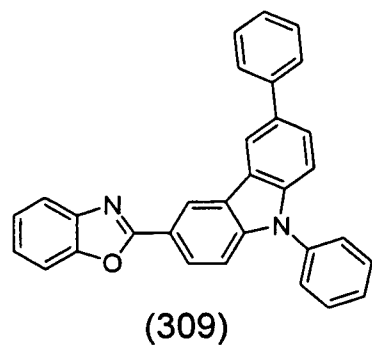
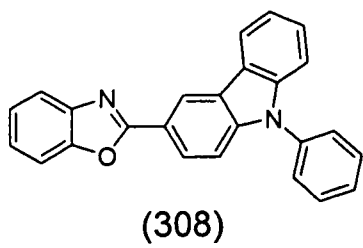
(305)

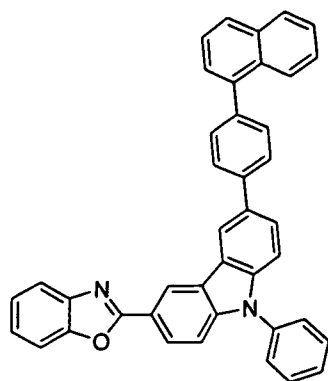


(306)

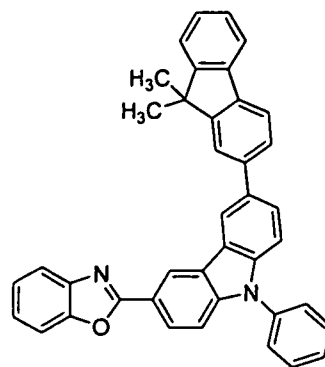


(307)

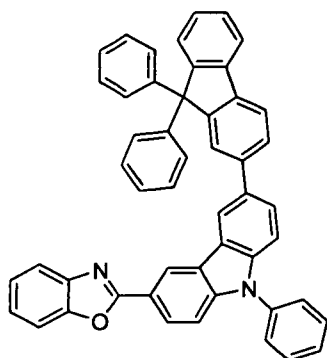




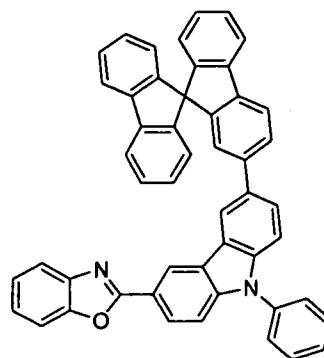
(316)



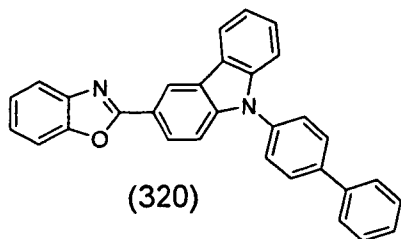
(317)



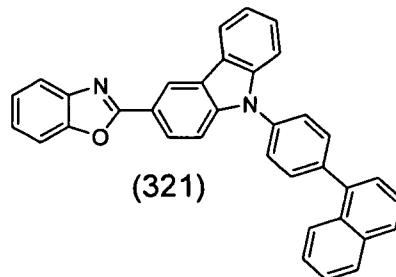
(318)



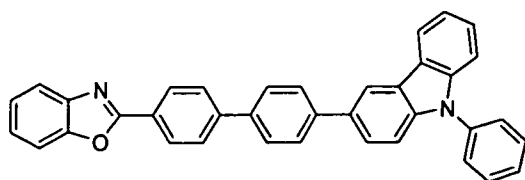
(319)



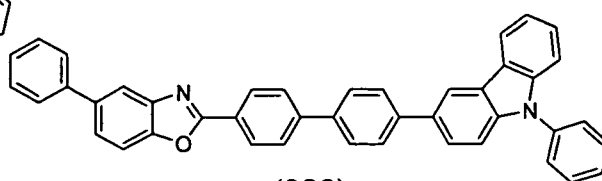
(320)



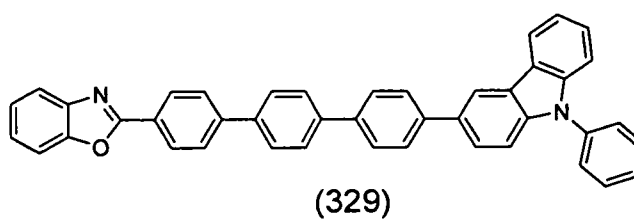
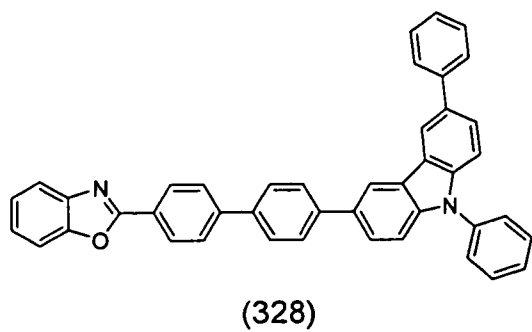
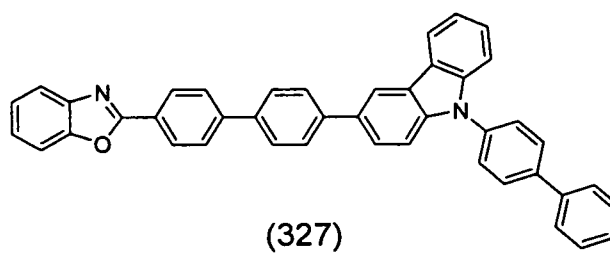
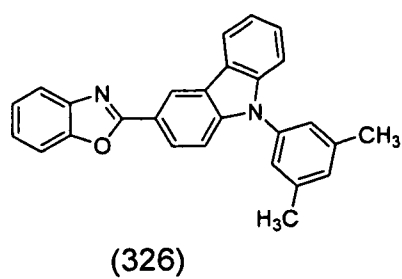
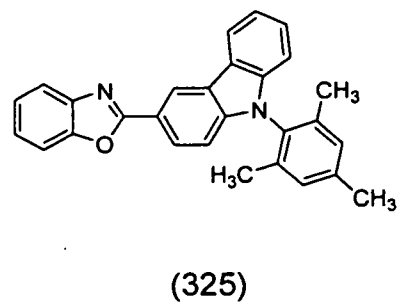
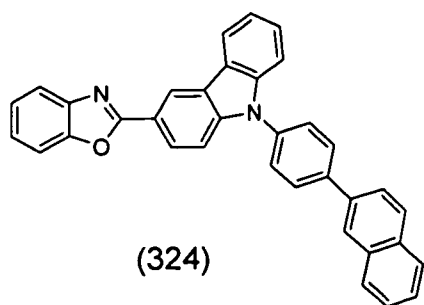
(321)

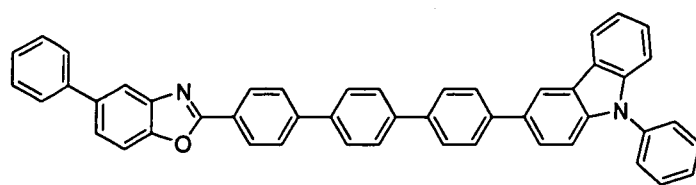


(322)

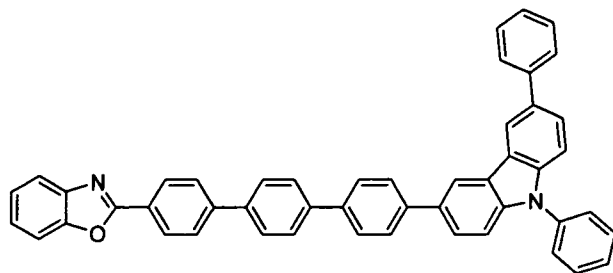


(323)

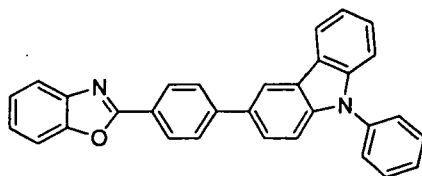




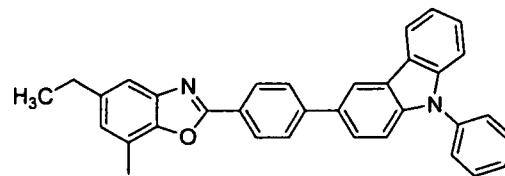
(330)



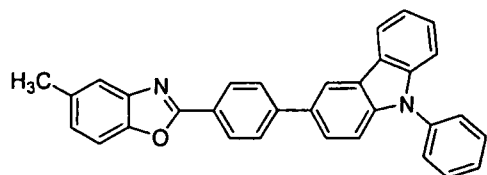
(331)



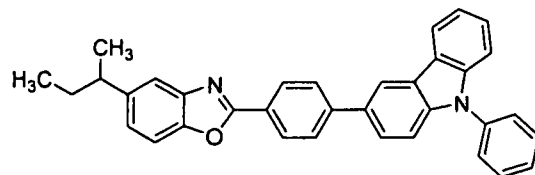
(332)



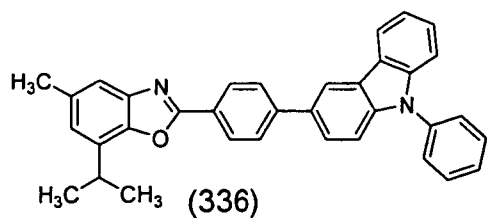
(333)



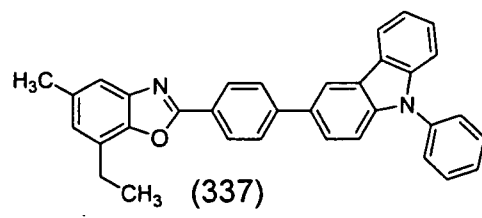
(334)



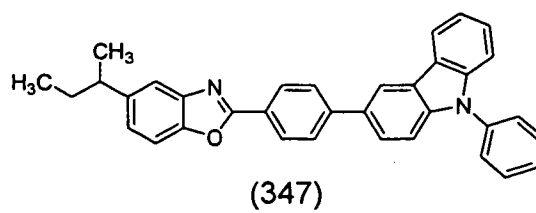
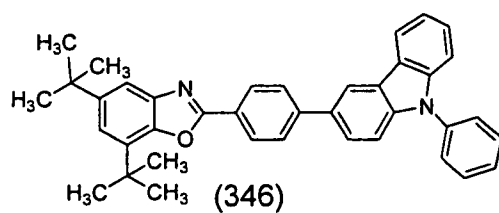
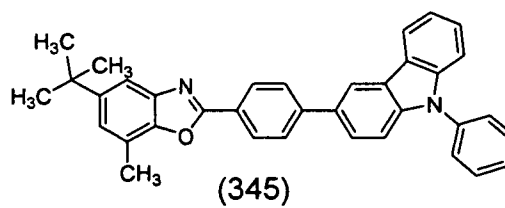
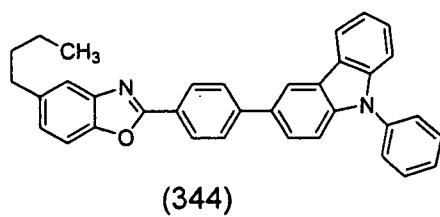
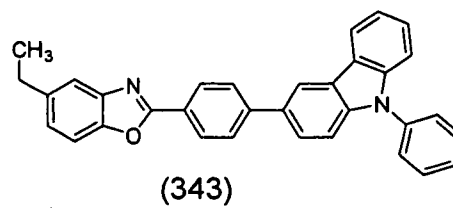
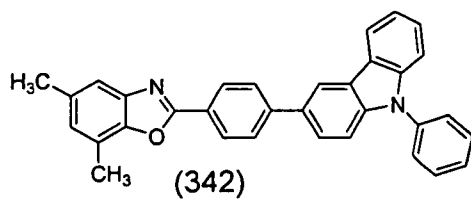
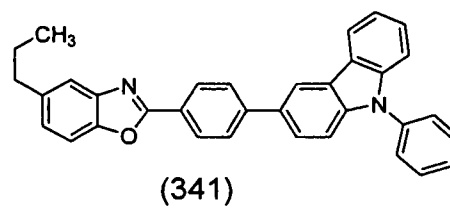
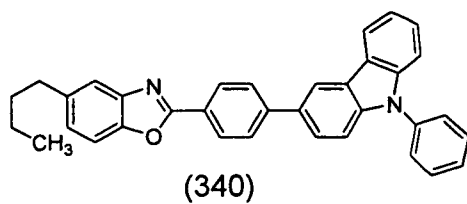
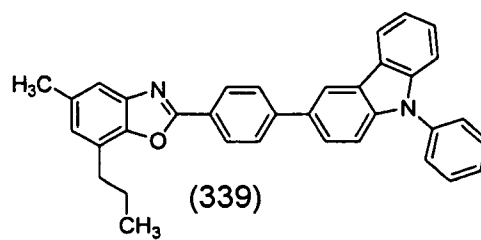
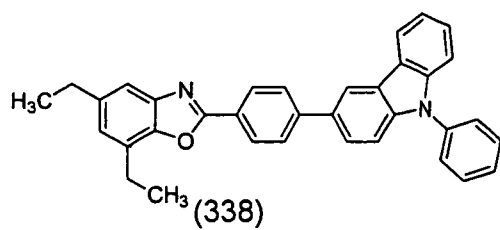
(335)

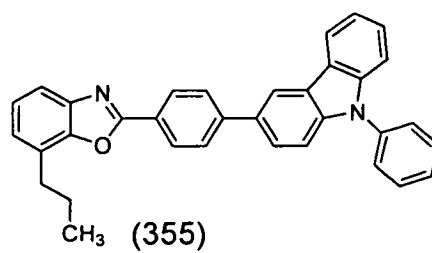
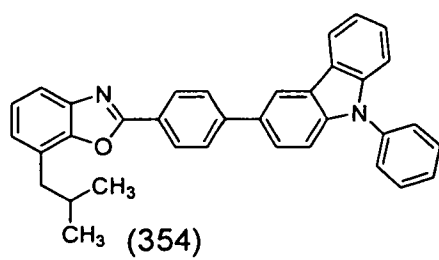
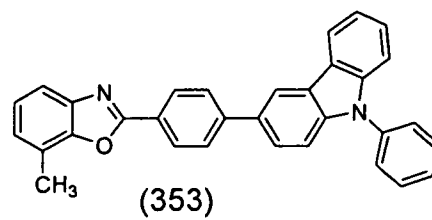
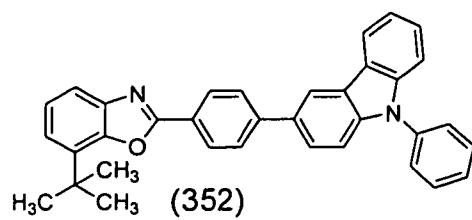
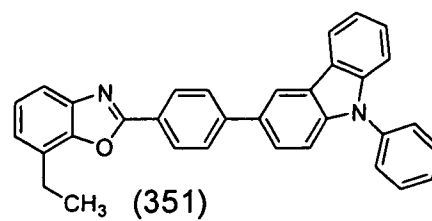
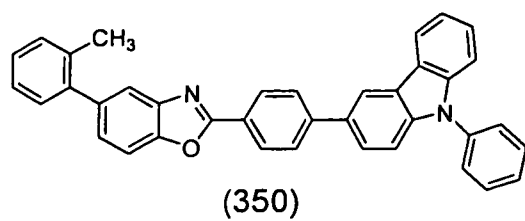
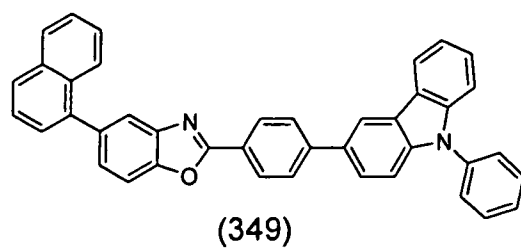
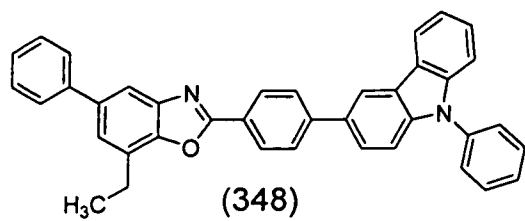


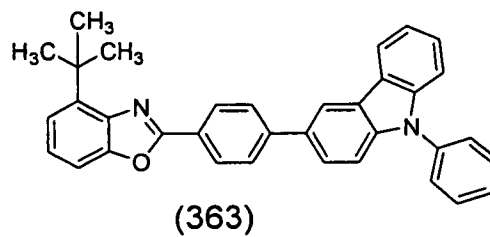
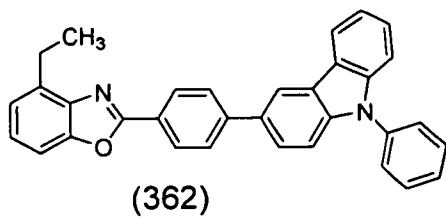
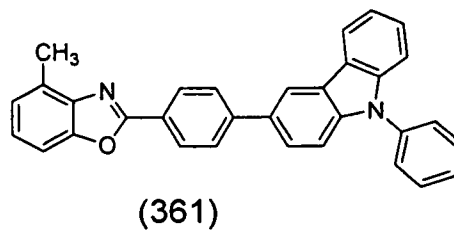
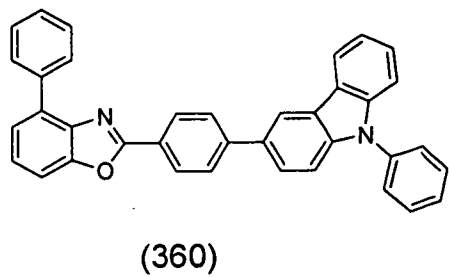
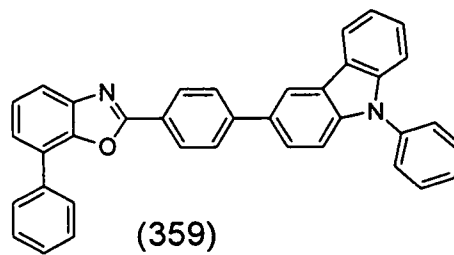
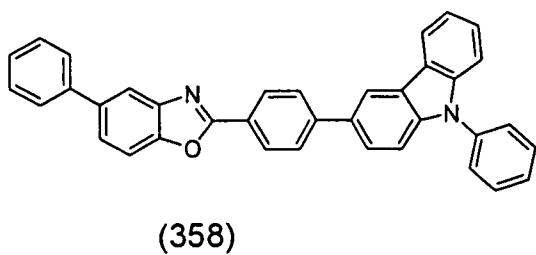
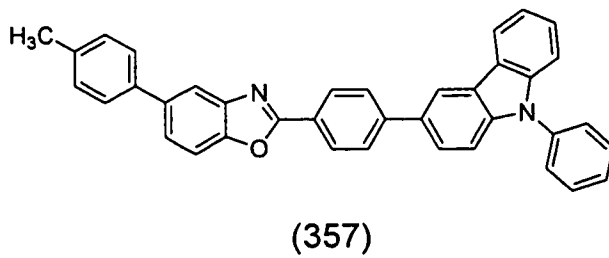
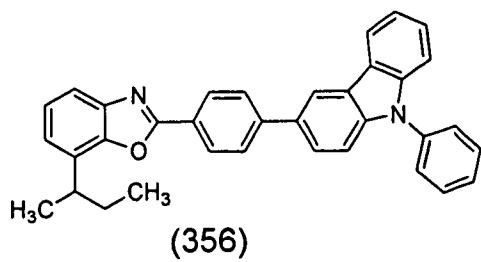
(336)

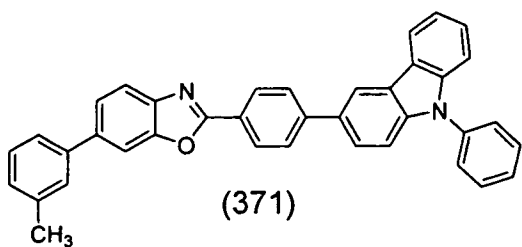
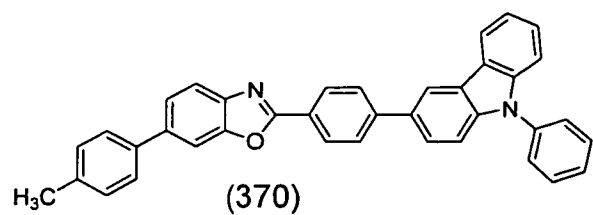
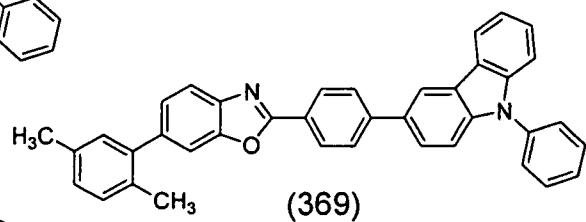
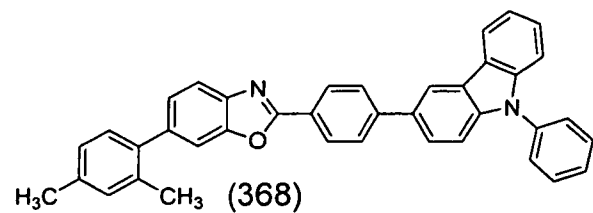
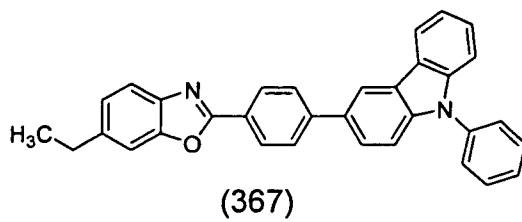
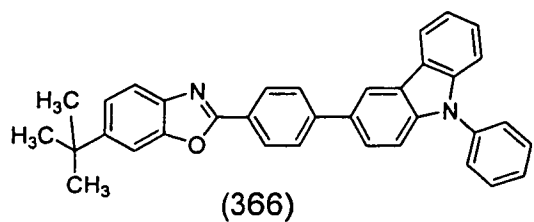
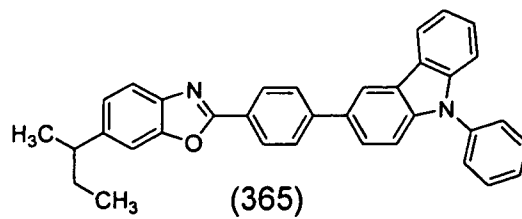
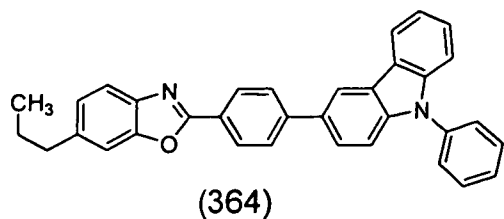


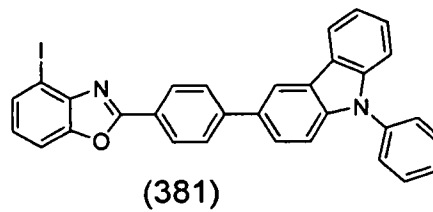
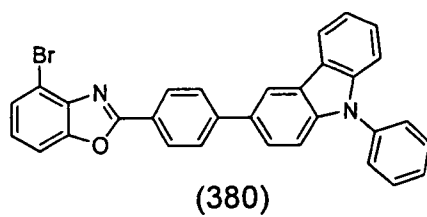
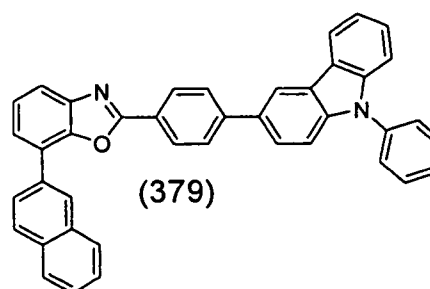
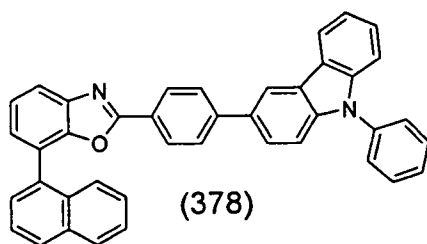
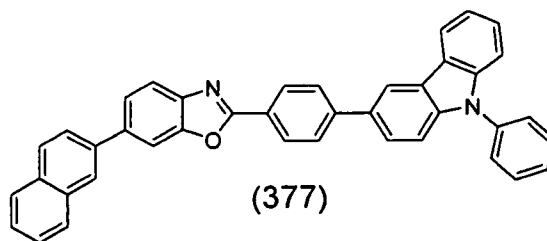
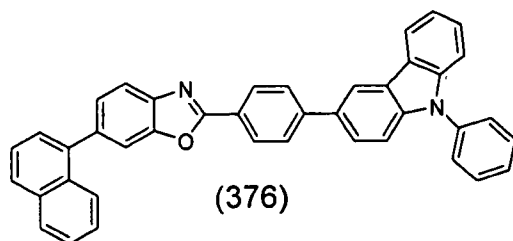
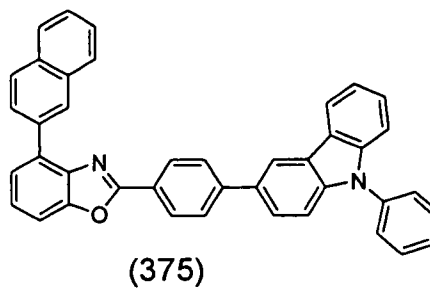
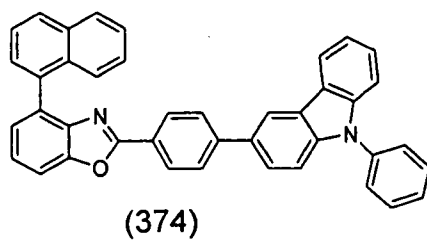
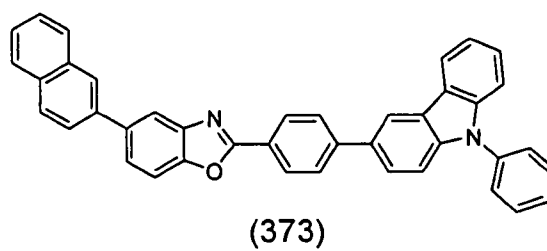
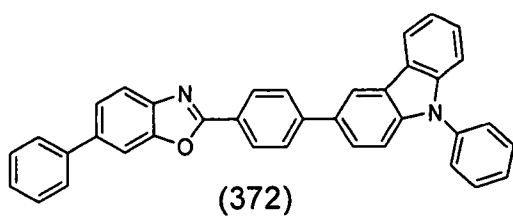
(337)

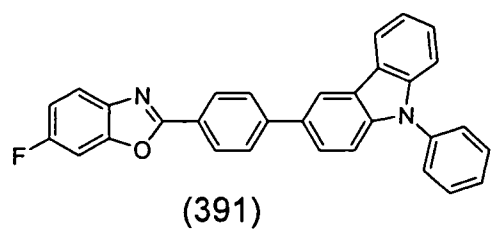
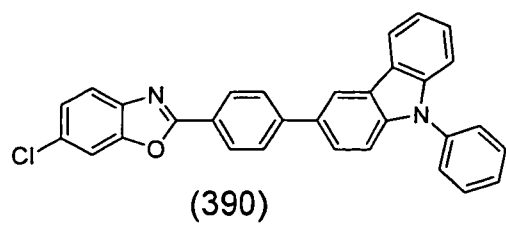
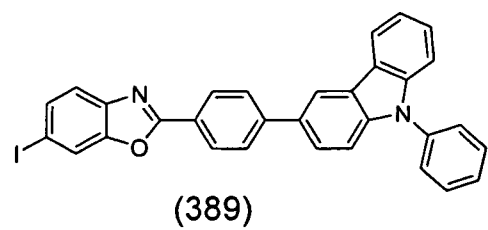
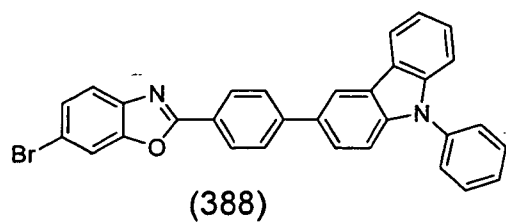
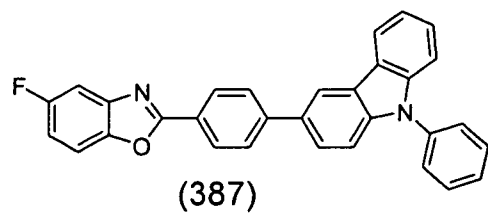
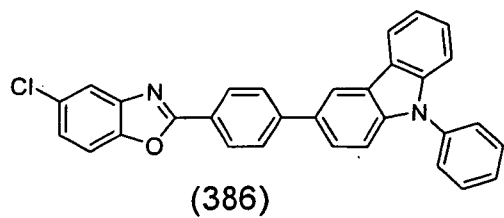
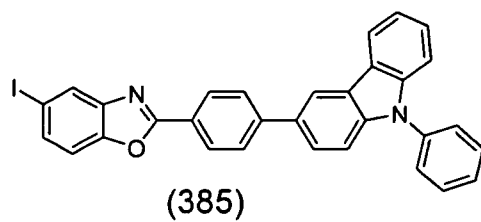
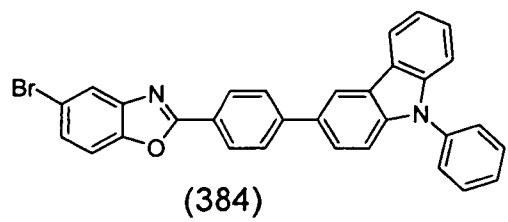
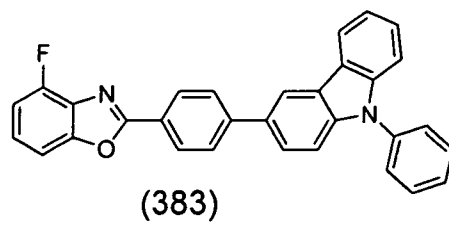
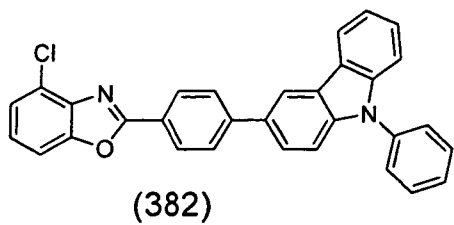


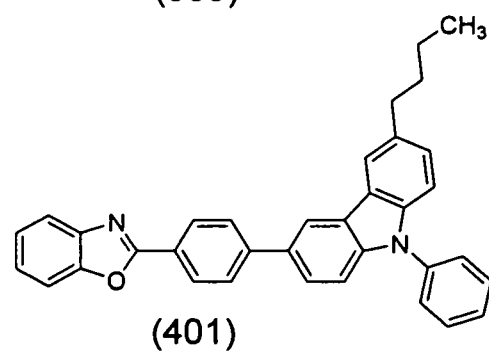
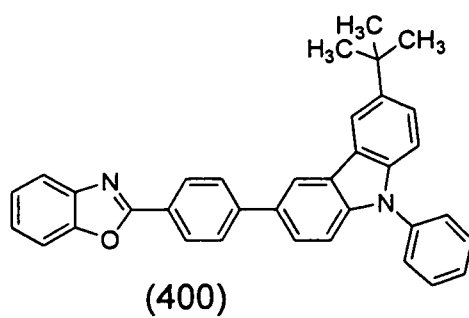
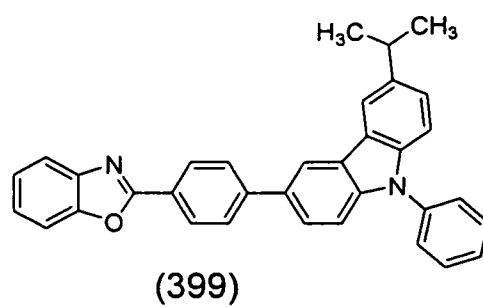
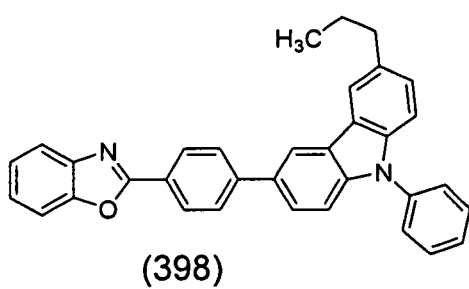
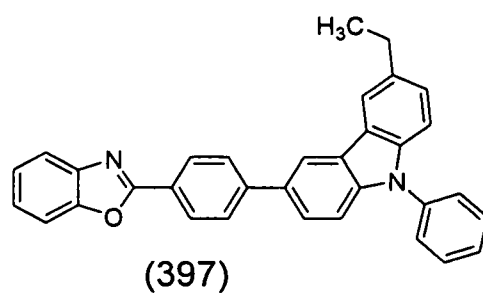
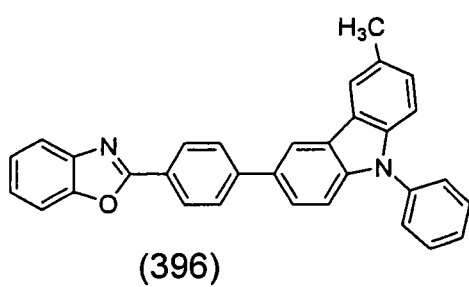
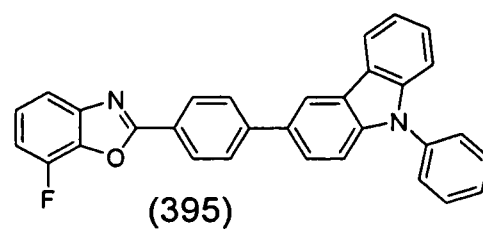
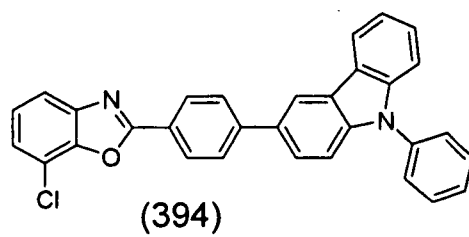
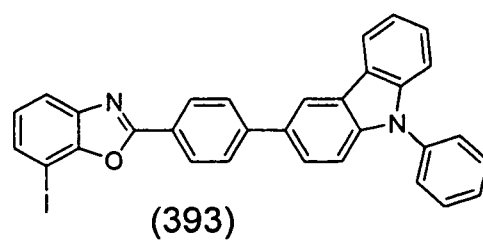
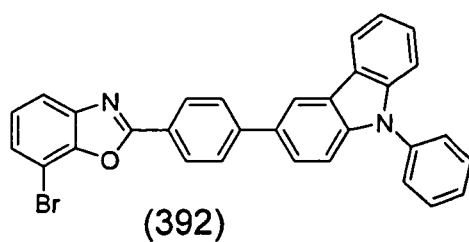


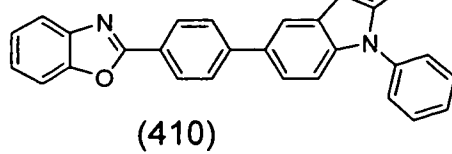
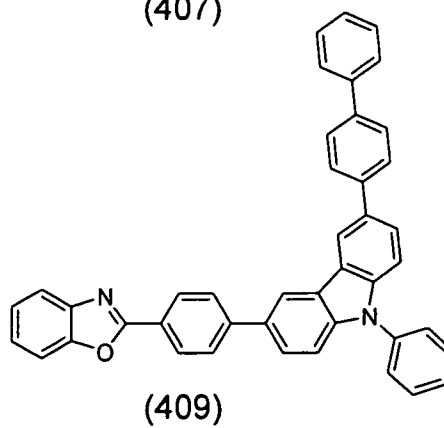
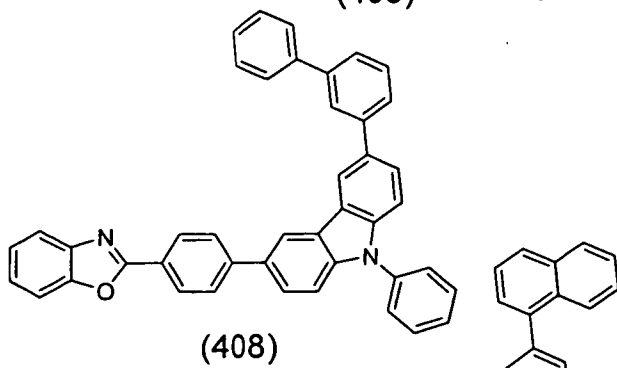
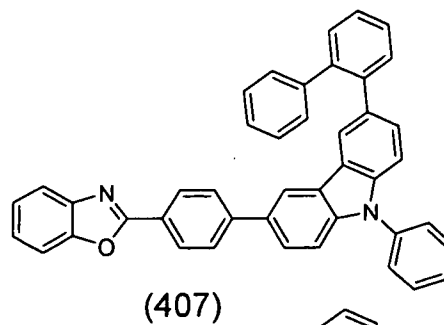
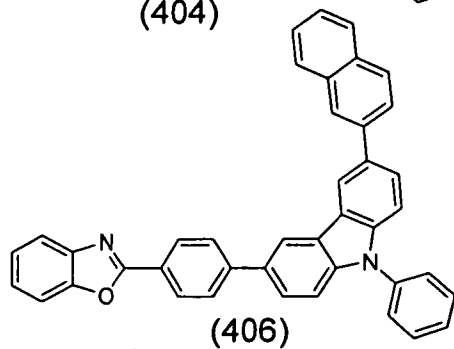
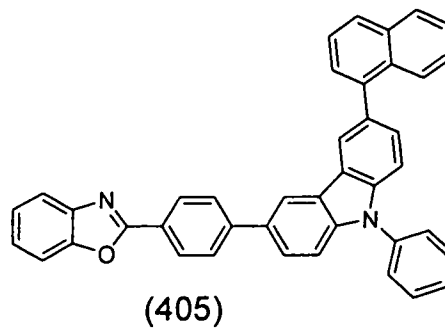
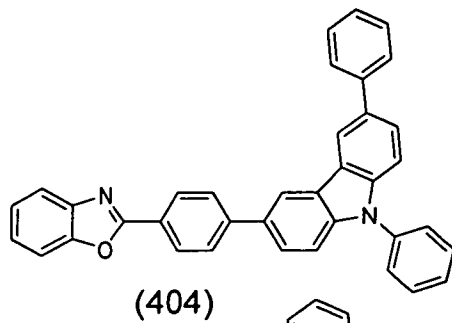
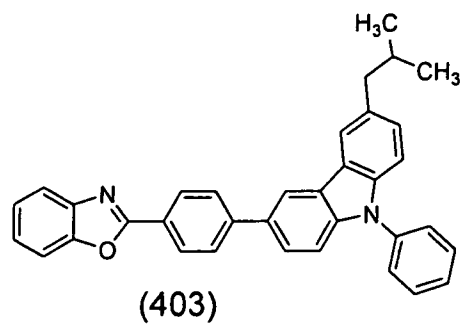
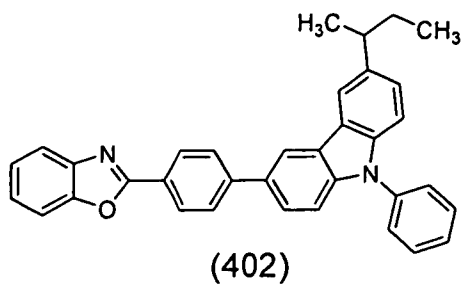


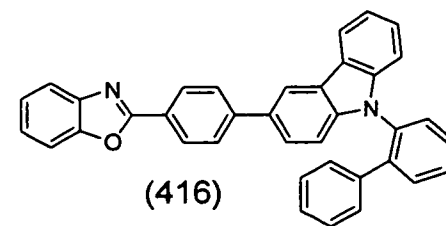
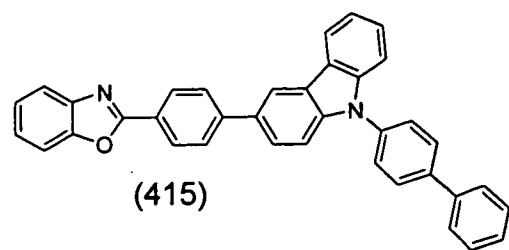
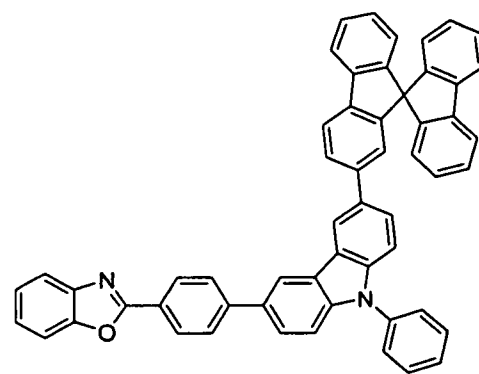
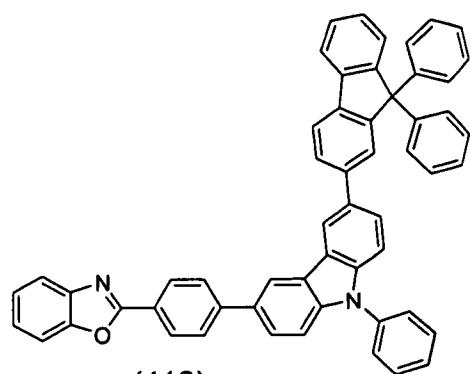
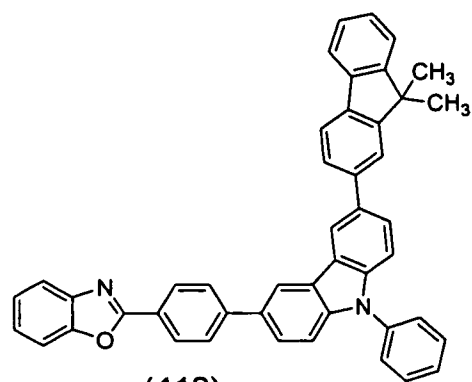
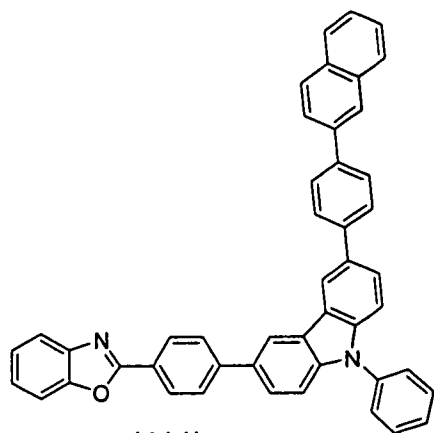


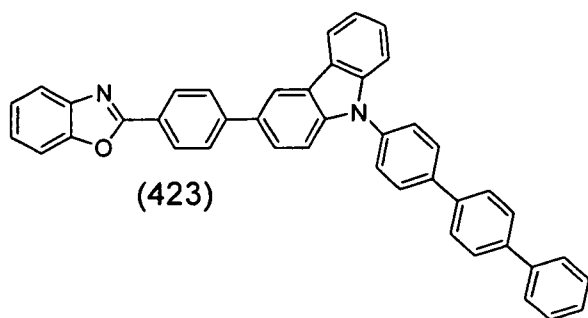
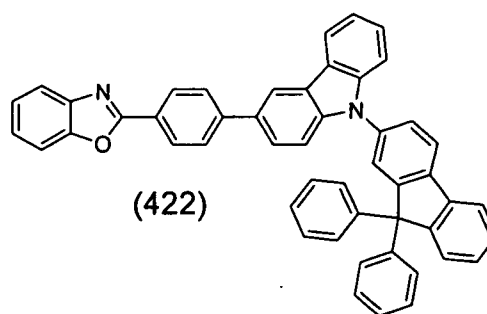
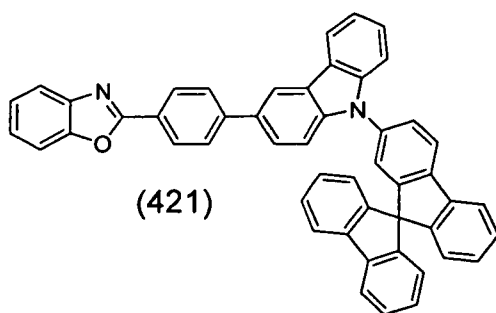
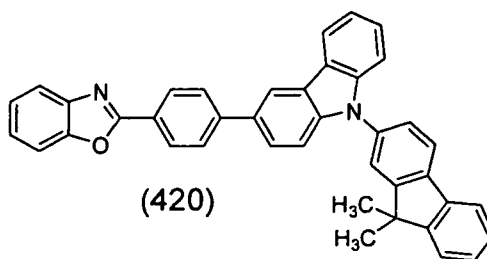
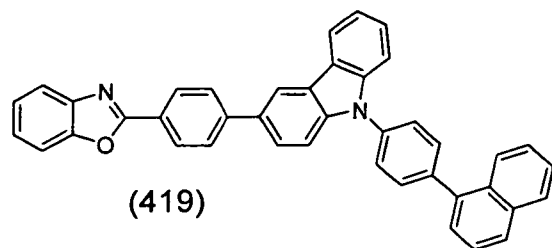
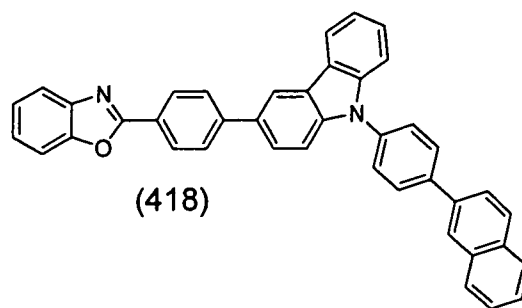
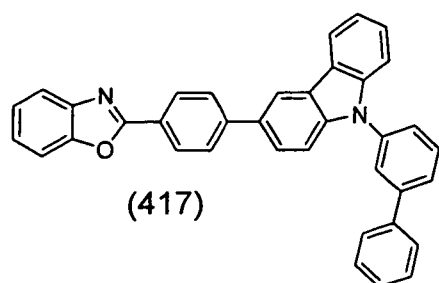


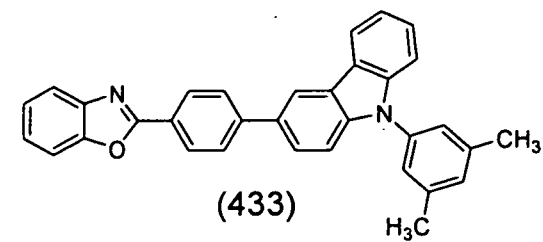
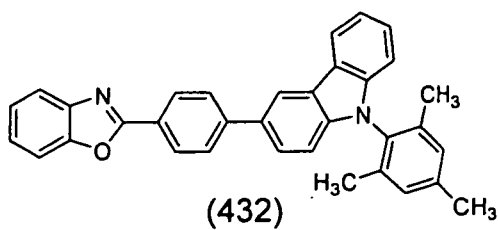
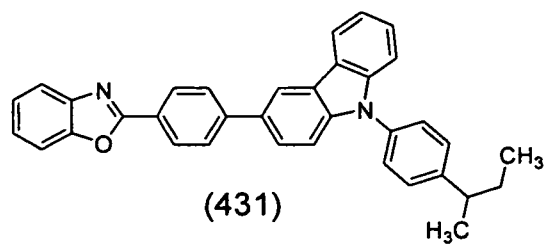
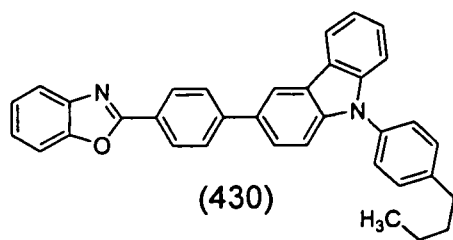
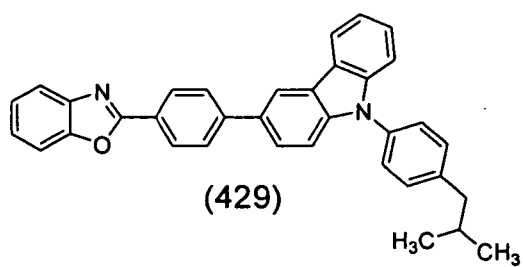
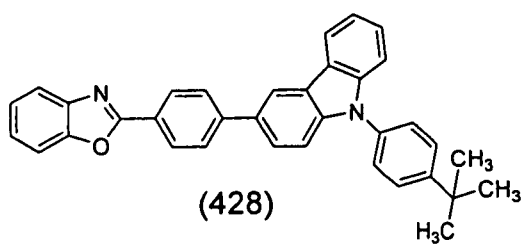
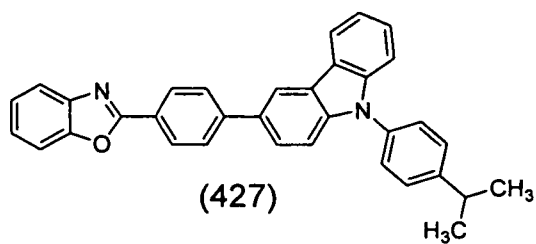
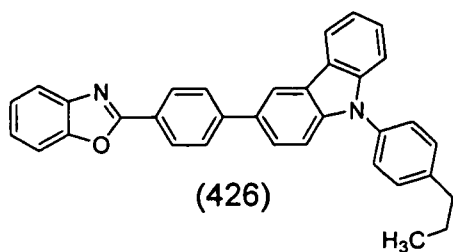
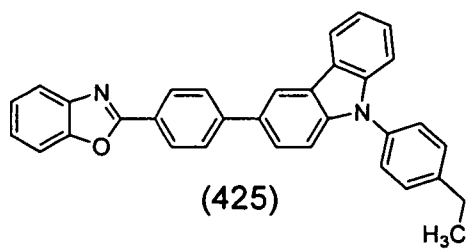
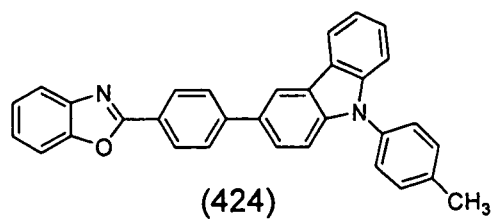




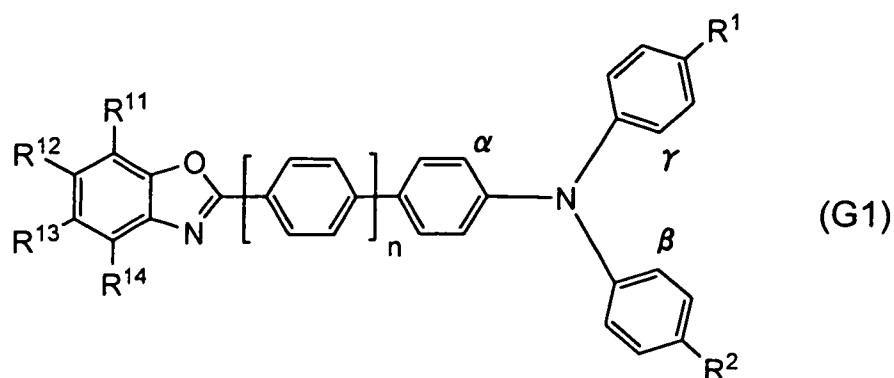






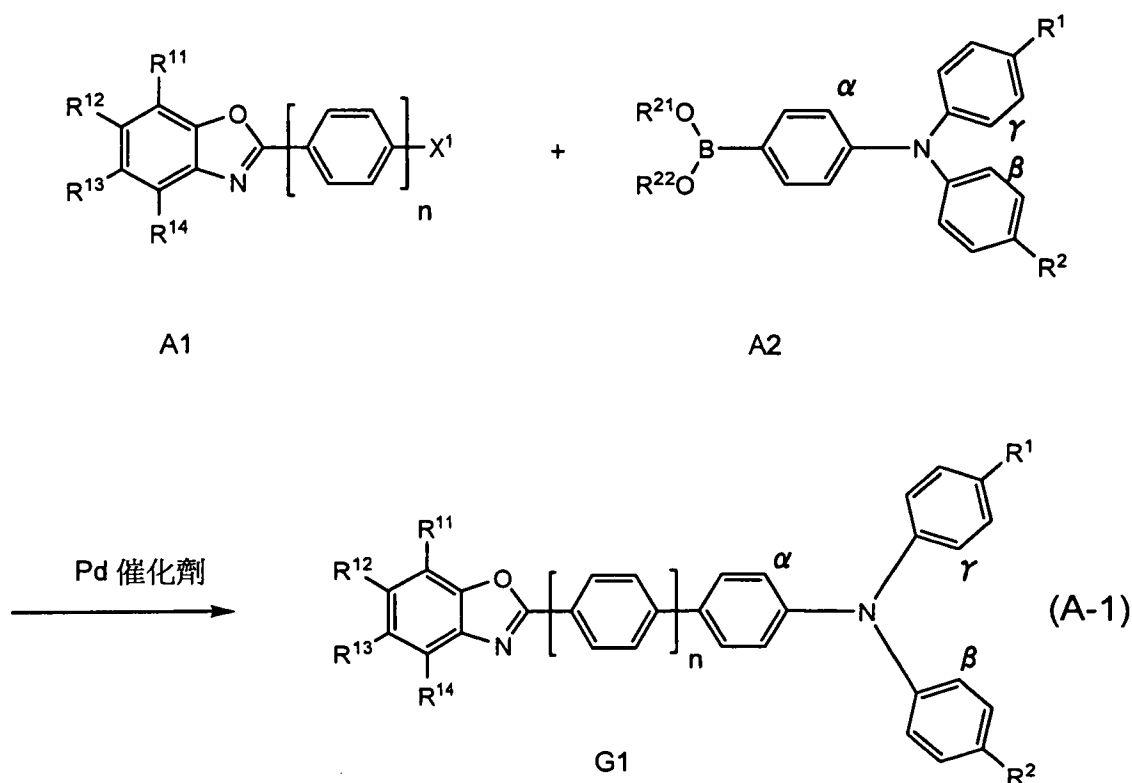


作為本發明的苯并噁唑衍生物的合成方法，可以應用各種反應。例如，藉由進行下面所示的合成反應，可以合成以下面通式（G1）表示的本發明的苯并噁唑衍生物。注意，本發明的苯并噁唑衍生物的合成方法不侷限於下面的合成方法。



<以通式（G1）表示的苯并噁唑衍生物的合成方法 1>

以通式（G1）表示的苯并噁唑化合物可以如合成圖解（A-1）那樣合成。就是說，藉由使用鈀催化劑的鈴木·宮浦（Suzuki-Miyaura）反應將鹵化了的苯并噁唑化合物（化合物 A1）和呋唑化合物的硼酸或 9H-呋唑化合物被有機硼取代的化合物（化合物 A2）耦合，可以獲得本發明的苯并噁唑化合物（通式（G1））。



在合成圖解 (A-1) 中， X^1 表示鹵素或三氟甲磺醯基 (triflate group)，作為鹵素可以舉出碘、溴、氯。另外， R^{11} 至 R^{14} 分別表示氫原子、鹵素、碳原子數為 1 至 4 的烷基、未取代的碳原子數為 6 至 10 的芳基中的任一種。注意， n 為 0 至 3。另外， R^1 和 R^2 分別表示氫原子、碳原子數為 1 至 4 的烷基、取代或未取代的碳原子數為 6 至 13 的芳基。注意，被取代的芳基的取代基也可以彼此鍵合而形成環，並且該環結構可以為螺環結構。另外， R^{21} 和 R^{22} 分別是氫、碳原子數為 1 至 4 的烷基， R^{21} 和 R^{22} 也可以彼此鍵合而形成環。再者， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成咪唑骨架。

在合成圖解 (A-1) 中，可以使用的鈀催化劑，可以舉出醋酸鈀 (II)、四 (三苯基膦) 合鈀 (0) 等。注意，作為在合成圖解 (A-1) 中可使用的鈀催化劑的配體，可

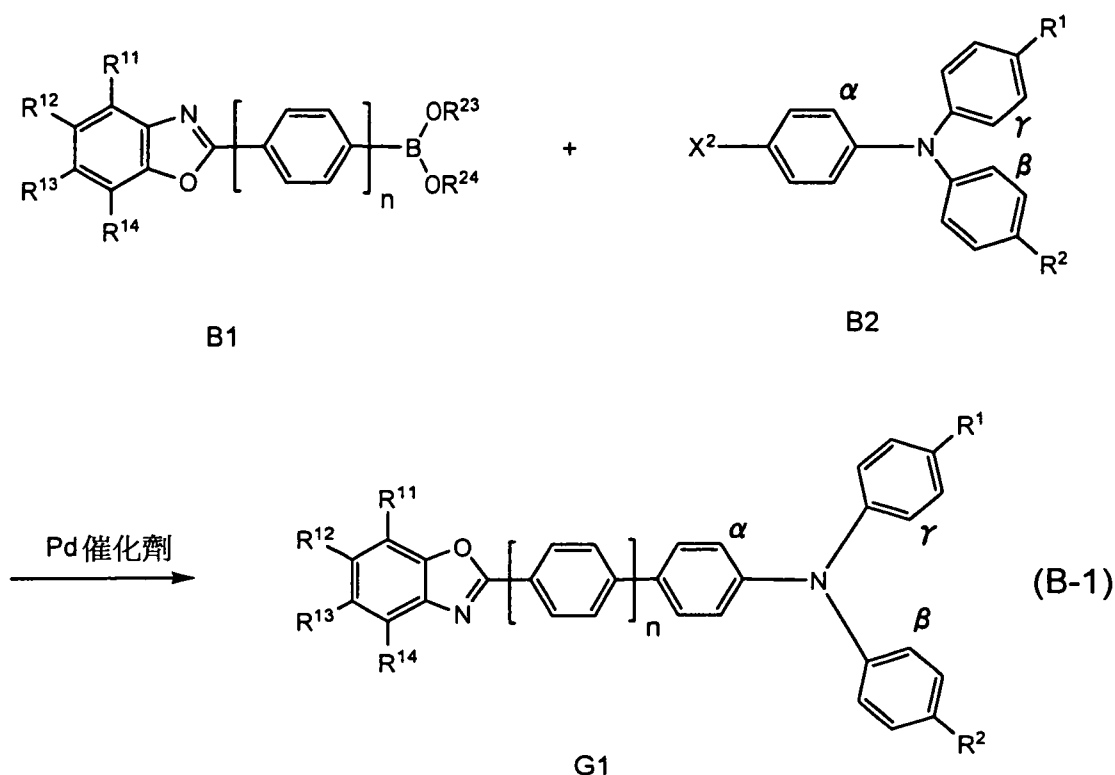
以舉出三（鄰甲苯基）膦、三苯基膦、三環己基膦等。

作為在合成圖解（A-1）中可使用的鹼可以舉出有機鹼如叔丁醇鈉等、無機鹼如碳酸鉀等。

作為在合成圖解（A-1）中可使用的溶劑，可以舉出甲苯和水的混合溶劑、甲苯和乙醇等醇和水的混合溶劑、二甲苯和水的混合溶劑、二甲苯和乙醇等醇和水的混合溶劑、苯和水的混合溶劑、苯和乙醇等醇和水的混合溶劑、1,2-二甲氧基乙烷等醚類和水的混合溶劑等。另外，較佳為甲苯和水的混合溶劑、或甲苯和乙醇和水的混合溶劑。

<以通式（G1）表示的化合物的合成方法 2>

以通式（G1）表示的苯并喹啉化合物可以如合成圖解（B-1）那樣合成。就是說，藉由使用鈀催化劑的鈴木·宮浦反應將苯并喹啉化合物的硼酸或苯并喹啉化合物被有機硼取代的化合物（化合物 B1）和鹵化了的 9H-喹啉化合物（化合物 B2）耦合，來可以獲得本發明的苯并喹啉化合物（通式（G1））。



在合成圖解 (B-1) 中，X² 表示鹵素或三氟甲磺醯基，作為鹵素可以舉出碘、溴、氯。另外，R¹ 和 R² 分別表示氫原子、碳原子數為 1 至 4 的烷基、取代或未取代的碳原子數為 6 至 13 的芳基。注意，取代基也可以彼此鍵合而形成環，並且該環結構可以為螺環結構。再者，α、β、γ 中的任二者之間形成一鍵而形成呋唑骨架。另外，R¹¹ 至 R¹⁴ 分別表示氫原子、鹵素、碳原子數為 1 至 4 的烷基、未取代的碳原子數為 6 至 10 的芳基中的任一種。另外，R²³ 和 R²⁴ 分別是氫、碳原子數為 1 至 4 的烷基，R²³ 和 R²⁴ 也可以彼此鍵合而形成環。注意，n 為 0 至 3。

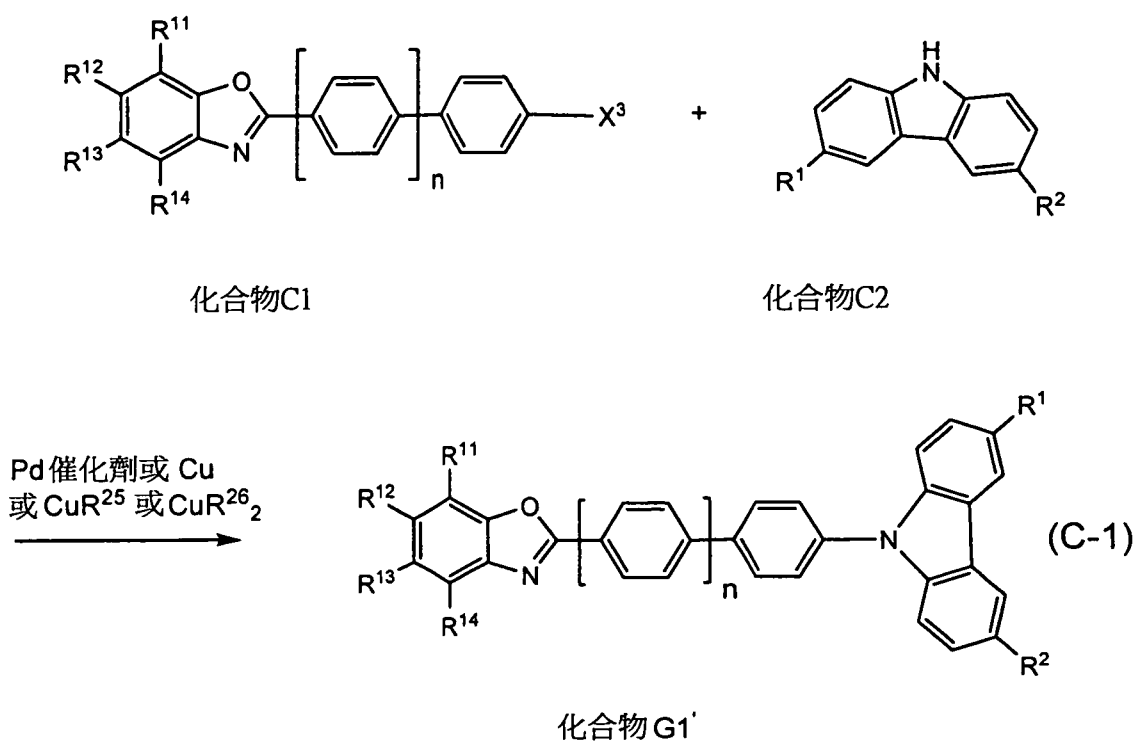
在合成圖解 (B-1) 中，可以使用的鈀催化劑，可以舉出醋酸鈀 (II)、四 (三苯基膦) 合鈀 (0) 等。注意，作為在合成圖解 (B-1) 中可使用的鈀催化劑的配體，三 (鄰甲苯基) 膦、三苯基膦、三環己基膦等。

作為在合成圖解 (B-1) 中可使用的鹼可以舉出有機鹼如叔丁醇鈉等、無機鹼如碳酸鉀等。

作為在合成圖解 (B-1) 中可使用的溶劑，可以舉出甲苯和水的混合溶劑、甲苯和乙醇等醇和水的混合溶劑、二甲苯和水的混合溶劑、二甲苯和乙醇等醇和水的混合溶劑、苯和水的混合溶劑、苯和乙醇等醇和水的混合溶劑、1,2-二甲氧基乙烷等醚類和水的混合溶劑等。另外，較佳為甲苯和水的混合溶劑、或甲苯和乙醇和水的混合溶劑。

<以通式 (G1) 表示的化合物的合成方法 3>

以通式 (G1') 表示的苯并噁唑化合物可以如合成圖解 (C-1) 那樣合成。就是說，藉由在鹼存在下使用金屬催化劑、金屬或金屬化合物將鹵化了的苯并噁唑化合物 (化合物 C1) 和 9H-苯并噁唑化合物 (化合物 C2) 耦合，可以獲得苯并噁唑化合物 (通式 (G1')) 。



在合成圖解 (C-1) 中， X^3 表示鹵素或三氟甲磺醯基，作為鹵素可以舉出碘、溴。另外， R^{11} 至 R^{14} 分別表示氫原子、鹵素、碳原子數為 1 至 4 的烷基、未取代的碳原子數為 6 至 10 的芳基中的任一種。注意， n 為 0 至 3。另外， R^1 和 R^2 分別表示氫原子、碳原子數為 1 至 4 的烷基、取代或未取代的碳原子數為 6 至 13 的芳基。注意，取代基也可以彼此鍵合而形成環，並且該環結構可以為螺環結構。

在合成圖解 (C-1) 中，作為當進行柏奇渥-哈特維希 (Buchwald-Hartwig) 反應時可以使用的鈀催化劑，可以舉出雙 (二亞苄基丙酮) 鈀 (0)、醋酸鈀 (II) 等。注意，作為在合成圖解 (C-1) 中可使用的鈀催化劑的配體，三 (叔丁基) 膦、三 (正己基) 膦、可以舉出三環己基膦等。

作為在合成圖解（C-1）中可使用的鹼可以舉出有機鹼如叔丁醇鈉等、無機鹼如碳酸鉀等。

另外，作為在合成圖解（C-1）中可使用的溶劑可以舉出甲苯、二甲苯、苯、四氫呋喃等。

另外，在合成圖解（C-1）中，說明進行烏爾曼（Ullmann）反應的情況。在合成圖解（C-1）中， R^{25} 、 R^{26} 分別表示鹵素或乙醯基等，作為鹵素可以舉出氯、溴、碘。另外，較佳地是， R^{25} 為碘，即碘化銅（I），或者或 R^{26} 為乙醯基，即醋酸銅（II）。此外，除了銅化合物以外，還可以使用銅。

作為在合成圖解（C-1）中可以使用的鹼，可以舉出碳酸鉀等無機鹼。

另外，作為在合成圖解（C-1）中可以使用的溶劑，可以舉出1,3-二甲基-3,4,5,6-四氫-2（1H）嘧啶酮（DMPU）、甲苯、二甲苯、苯等。但是，上述可以使用的溶劑不侷限於這些。在烏爾曼反應中，當反應溫度是100℃或以上時以更短時間和高產率可以獲得目的物，所以較佳使用沸點高的DMPU、二甲苯。此外，反應溫度更較佳為150℃或以上的更高溫度，所以更較佳使用DMPU。

實施方式 2

在本實施方式 2 中，對將實施方式 1 所說明的本發明的苯并噁唑衍生物用於發光層而形成的發光元件進行說明。

本實施方式 2 中的發光元件由用作陽極的第一電極、用作陰極的第二電極以及在第一電極和第二電極之間設置的 EL 層構成。注意，當以第一電極的電位高於第二電極的電位的方式分別施加電壓時，本實施方式 2 中的發光元件可以獲得發光。

另外，本實施方式 2 中的發光元件的 EL 層具有從第一電極一側包括第一層（電洞注入層）、第二層（電洞傳輸層）、第三層（發光層）第四層（電子傳輸層）、第五層（電子注入層）的結構。

參照圖 1A 和 1B 說明本實施方式 2 的發光元件的結構。基板 101 用作發光元件的支撐體。作為基板 101，例如可以使用玻璃、石英、塑膠等。

注意，可以將上述基板 101 留在利用本發明的發光元件的產品的發光裝置或電子裝置中，但是也可以不留在最終產品中而只在發光元件的製造工序中做為支撐體的作用。

作為形成在基板 101 上的第一電極 102，較佳使用功函數大的（具體地， 4.0eV 或以上）的金屬、合金、導電化合物、以及它們的混合物等。具體而言，例如可以舉出氧化銦-氧化錫（ITO：氧化銦錫）、含有矽或氧化矽的氧化銦-氧化錫、氧化銦-氧化鋅（IZO：氧化銦鋅）、含有氧化鎢及氧化鋅的氧化銦等。另外，可以舉出金（Au）、鉑（Pt）、鎳（Ni）、鎢（W）、鉻（Cr）、鉬（Mo）、鐵（Fe）、鈷（Co）、銅（Cu）、鈀（Pd）、鈦（Ti）或

金屬材料的氮化物（例如，氮化鈦）等。但是，在本發明中，因為與第一電極 102 接觸地形成的 EL 層 103 中的第一層 111 使用不管第一電極 102 的功函數容易進行電洞注入的複合材料形成，所以只要是作為電極材料可使用的材料（如金屬、合金、導電化合物以及它們的混合物，除這些之外還包括屬於元素週期表的第 1 族或第 2 族的元素），就可以使用眾所周知的材料。

通常藉由濺射法形成這些材料。例如，可以藉由使用相對於氧化銦添加 1wt%至 20wt%的氧化鋅的靶且利用濺射法來形成氧化銦-氧化鋅（IZO）。此外，可以藉由使用相對於氧化銦添加有 0.5wt%至 5wt%的氧化錫和 0.1wt%至 1wt%的氧化鋅的靶且利用濺射法，來形成含有氧化錫和氧化鋅的氧化銦。除了上述方法之外，還可以採用真空蒸鍍法、塗敷法、噴墨法、旋塗法等製造。

另外，在作為用於形成在第一電極 102 上的 EL 層 103 中的以接觸於第一電極 102 的方式形成的第一層 111 的材料，使用包含下述複合材料的情況下，作為用於第一電極 102 的物質，可以與功函數的大小無關地使用各種金屬、合金、導電化合物、以及它們的混合物等。例如，還可以使用鋁（Al）、銀（Ag）、包含鋁的合金（AlSi）等。

此外，還可以使用作為功函數小的材料的屬於元素週期表中第 1 族或第 2 族的元素，即鹼金屬如鋰（Li）或鉍（Cs）等；鹼土金屬如鎂（Mg）、鈣（Ca）或銦（Sr）

等；包含這些金屬的合金（MgAg、AlLi）；稀土金屬如鈾（Eu）、鐳（Yb）等；以及包含它們的合金等。

注意，在使用鹼金屬、鹼土金屬、以及包含這些金屬的合金形成第一電極 102 的情況下，可以採用真空蒸鍍法或濺射法。再者，在使用銀膏等的情況下，可以採用塗敷法或噴墨法等。

可以使用已知的物質作為形成在第一電極 102 上的 EL 層 103，既可以採用低分子化合物也可以採用高分子化合物。注意，形成 EL 層 103 的物質不限於有機化合物，亦可包含無機化合物。

藉由將包含具有高電洞注入性的物質而成的電洞注入層、包含具有高電洞傳輸性的物質而成的電洞傳輸層、由發光物質構成的發光層、包含具有高電子傳輸性的物質而成的電子傳輸層、包含具有高電子注入性的物質而成的電子注入層等適當地組合而層疊，來形成 EL 層 103。

注意，圖 1A 所示的 EL 層 103 從第一電極 102 一側按順序層疊有第一層（電洞注入層）111、第二層（電洞傳輸層）112、第三層（發光層）113、第四層（電子傳輸層）114、以及第五層（電子注入層）115。

作為電洞注入層的第一層 111 是包含具有高電洞注入性的物質的電洞注入層。作為具有高電洞注入性的物質，可以使用鉬氧化物、鈦氧化物、釩氧化物、銻氧化物、釷氧化物、鉻氧化物、鋯氧化物、鉛氧化物、鉭氧化物、銀氧化物、鎢氧化物以及錳氧化物等。另外，作為低分子有

機化合物，也可以使用酞菁類化合物諸如酞菁（簡稱： H_2Pc ）、銅（II）酞菁（簡稱： $CuPc$ ）、釩氧酞菁（簡稱： $VOpc$ ）等。

此外，還可以使用作為低分子有機化合物的芳香胺化合物等，諸如 4,4',4''-三（N,N-二苯基胺基）-三苯胺（簡稱：TDATA）、4,4',4''-三〔N-（3-甲基苯基）-N-苯基胺基〕-三苯胺（簡稱：MTDATA）、4,4'-雙〔N-（4-二苯基胺基苯基）-N-苯基胺基〕聯苯（簡稱：DPAB）、4,4'-雙〔N-〔4-〔N'-（3-甲基苯基）-N'-苯基胺基〕苯基〕-N-苯基胺基〕聯苯（簡稱：DNTPD）、1,3,5-三〔N-（4-二苯基胺基苯基）-N-苯基胺基〕苯（簡稱：DPA3B）、3-〔N-（9-苯基咔唑-3-基）-N-苯基胺基〕-9-苯基咔唑（簡稱：PCzPCA1）、3,6-二〔N-（9-苯基咔唑-3-基）-N-苯基胺基〕-9-苯基咔唑（簡稱：PCzPCA2）、以及 3-〔N-（1-萘基）-N-（9-苯基咔唑-3-基）胺基〕-9-苯基咔唑（簡稱：PCzPCN1）等。

再者，還可以使用高分子化合物（低聚物、樹枝狀聚合物、聚合物等）。例如，可以舉出以下高分子化合物：聚（N-乙烯咔唑）（簡稱：PVK）；聚（4-乙烯三苯胺）（簡稱：PVTPA）；聚〔N-（4-〔N'-〔4-（4-二苯基胺基）苯基〕苯基-N'-苯基胺基〕苯基）甲基丙烯醯胺〕（簡稱：PTPDMA）；以及聚〔N,N'-雙（4-丁基苯基）-N,N'-雙（苯基）聯苯基胺〕（簡稱：Poly-TPD）等。另外，還可以使用添加了酸的高分子化合物諸如聚（3,4-伸乙二氧

噻吩) / 聚(苯乙烯磺酸) (PEDOT/PSS)、或聚苯胺 / 聚(苯乙烯磺酸) (PAni/PSS) 等。

作為第一層 111 的材料，可以使用使受體 (acceptor) 物質混入具有高電洞傳輸性的物質中的複合材料。注意，藉由使用使具有高電洞傳輸性的物質包含受體物質的複合材料，可以與其功函數無關地選擇用於形成電極的材料。換句話說，除了功函數大的材料之外，還可以使用功函數小的材料作為第一電極 102。這些複合材料可以藉由具有高電洞傳輸性的物質和受體物質的共蒸鍍來形成。注意，在本說明書中，複合不只指兩種材料的簡單混合物，亦指多種材料的混合物，只要材料之間發生電荷的授受情形即可。

可以使用各種化合物作為用於複合材料的有機化合物，例如芳香胺化合物、吡啉衍生物、芳香烴、以及高分子化合物（低聚物、樹枝狀聚合物、以及聚合物等）等。注意，較佳使用具有高電洞傳輸性的有機化合物作為用於複合材料的有機化合物。具體地說，較佳使用電洞遷移率為 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 或以上的物質。然而，只要是電洞傳輸性比電子傳輸性高的物質即可，可以使用除此之外的其他物質。下面，具體地舉出能夠用於複合材料的有機化合物。

可以使用如下材料作為能夠用於複合材料的有機化合物，例如芳香胺化合物諸如 MTDATA、TDATA、DPAB、DNTPD、DPA3B、PCzPCA1、PCzPCA2、PCzPCN1、4,4'-雙〔N-(1-萘基)-N-苯基胺基〕聯苯（簡稱：NPB 或 α -

NPD) 、以及 N,N'-雙 (3-甲基苯基) -N,N'-二苯基 - [1,1'-聯苯] -4,4'-二胺 (簡稱 : TPD) 等 ; 或者咪唑衍生物 諸如 4,4'-二 (N-咪唑基) -聯苯 (簡稱 : CBP) 、 1,3,5-三 [4- (N-咪唑基) 苯基] 苯 (簡稱 : TCPB) 、 9- [4- (N-咪唑基)] 苯基 -10-苯基蒽 (簡稱 : CzPA) 、以及 1,4-雙 [4- (N-咪唑基) 苯基] -2,3,5,6-四苯基苯等。

此外 , 可以舉出芳香烴化合物 , 諸如 2-叔丁基 -9,10-二 (2-萘基) 蒽 (簡稱 : t-BuDNA) 、 2-叔丁基 -9,10-二 (1-萘基) 蒽 、 9,10-雙 (3,5-二苯基苯基) 蒽 (簡稱 : DPPA) 、 2-叔丁基 -9,10-雙 (4-苯基苯基) 蒽 (簡稱 : t-BuDBA) 、 9,10-二 (2-萘基) 蒽 (簡稱 : DNA) 、 9,10-二苯基蒽 (簡稱 : DPAnth) 、 2-叔丁基蒽 (簡稱 : t-BuAnth) 、 9,10-雙 (4-甲基-1-萘基) 蒽 (簡稱 : DMNA) 、 9,10-雙 [2- (1-萘基) 苯基] -2-叔丁基-蒽 、 9,10-雙 [2- (1-萘基) 苯基] 蒽 、 2,3,6,7-四甲基-9,10-二 (1-萘基) 蒽等。

而且 , 還可以舉出芳香烴化合物 , 諸如 2,3,6,7-四甲基 -9,10-二 (2-萘基) 蒽 、 9,9'-聯蒽 、 10,10'-二苯基 -9,9'-聯蒽 、 10,10'-雙 (2-苯基苯基) -9,9'-聯蒽 、 10,10'-雙 [(2,3,4,5,6-五苯基) 苯基] -9,9'-聯蒽 、 蒽 、 稠四苯 、 紅熒烯 、 芘 、 2,5,8,11-四 (叔丁基) 芘 、 稠五苯 、 苯并蒽 、 4,4'-雙 (2,2-二苯基乙烯基) 聯苯 (簡稱 : DPVBi) 、以及 9,10-雙 [4- (2,2-二苯基乙烯基) 苯基] 蒽 (簡稱 : DPVPA) 等。

此外 , 作為受體物質 , 可以舉出 7,7,8,8-四氫 -

2,3,5,6-四氟二甲基對苯醌（簡稱：F₄-TCNQ）、氯醌等的有機化合物、以及過渡金屬氧化物。另外，還可以舉出屬於元素週期表中的第4族至第8族元素的金屬的氧化物。具體地說，較佳使用氧化釩、氧化鈮、氧化鉭、氧化鉻、氧化鉬、氧化鎢、氧化錳以及氧化銻，因為它們的電子接受性高。其中，氧化鉬是尤其較佳的，因為氧化鉬在大氣中也穩定而且吸濕性低，被容易處理。

此外，作為第一層 111 也可以使用利用上述高分子化合物諸如 PVK、PVTTPA、PTPDMA、或 Poly-TPD 等、以及上述受體物質形成的複合材料。

作為電洞傳輸層的第二層 112 是包含具有高電洞傳輸性的物質的層。作為高電洞傳輸性的物質，可以使用芳香胺化合物如作為低分子有機化合物的 NPB（或 α -NPD）、TPD、4,4'-雙〔N-（9,9-二甲基芴-2-基）-N-苯基胺基〕聯苯（簡稱：DFLDPBi）、以及 4,4'-雙〔N-（螺-9,9'-聯芴-2-基）-N-苯基胺基〕聯苯（簡稱：BSPB）等。在此說明的物質是主要具有 $10^{-6}\text{cm}^2/\text{Vs}$ 或以上的電洞遷移率。但是，只要是比電洞的傳輸性高於電子傳輸性的物質，就可以使用這些之外的物質。注意，包括高電洞傳輸性的物質的層並不只限於單層，而是可以層疊兩層以上的包含上述物質的層。

另外，也可以作為第二層 122，可以使用包含受體物質的上述的高電洞傳輸性的物質的複合材料。

另外，作為第二層 112，可以使用 PVK、PVTTPA、

PTPDMA、Poly-TPD 等高分子化合物。

第三層 113 是包括高發光性的物質的發光層。注意，在本實施方式 2 中，對將本發明的苯并噁唑衍生物用於發光層的情況進行說明。注意，本發明的苯并噁唑衍生物既可以單獨使用於發光層，又可以在採用將高發光性的物質（客體材料）分散於另一物質（主體材料）的結構的發光層中，可以用作主體材料。

在將實施方式 1 所示的苯并噁唑衍生物用作主體材料的情況下，當客體材料發射螢光時，作為客體材料，較佳使用一種物質，其最低空分子軌域能級（LUMO 能級）低於實施方式 1 所示的苯并噁唑衍生物的最低空分子軌域能級而其最高佔據分子軌域能級（HOMO 能級）高於實施方式 1 所示的苯并噁唑衍生物的最高佔據分子軌域能級。例如，作為藍色發光材料，可以舉出 N,N'-雙〔4-（9H-咔唑-9-基）苯基〕-N,N'-二苯基芪-4,4'-二胺（簡稱：YGA2S）、4-（9H-咔唑-9-基）-4'-（10-苯基-9-蒽基）三苯胺（簡稱：YGAPA）等。另外，作為綠色發光材料，可以舉出 N-（9,10-二苯基-2-蒽基）-N,9-二苯基-9H-咔唑-3-胺（簡稱：2PCAPA）、N-〔9,10-雙（1,1'-聯苯-2-基）-2-蒽基〕-N,9-二苯基-9H-咔唑-3-胺（簡稱：2PCABPhA）、N-（9,10-二苯基-2-蒽基）-N,N',N'-三苯-1,4-苯二胺（簡稱：2DPAPA）、N-〔9,10-雙（1,1'-聯苯-2-基）-2-蒽基〕-N,N',N'-三苯-1,4-苯二胺（簡稱：2DPABPhA）、N-〔9,10-雙（1,1'-聯苯-2-基）〕-N-〔4-（9H-咔唑-9-基）

苯基〕-N-苯基蔥-2-胺（簡稱：2YGABPhA）、N,N,9-三苯蔥-9-胺（簡稱：DPhAPhA）等。另外，作為黃色發光材料，可以舉出紅熒烯、5,12-雙（1,1'-聯苯-4-基）-6,11-二苯基稠四苯（簡稱：BPT）等。另外，作為紅色發光材料，可以舉出N,N,N',N'-四（4-甲基苯基）稠四苯-5,11-二胺（簡稱：p-mPhTD）、7,13-二苯基-N,N,N',N'-四（4-甲基苯基）苾並〔1,2-a〕熒蔥-3,10-二胺（簡稱：p-mPhAFD）等。

在將實施方式 1 所示的苯并喹啉衍生物用作主體材料的情況下，當客體材料發射磷光時，作為客體材料，較佳使用一種物質，其三重態激發能小於實施方式 1 所示的苯并喹啉衍生物。例如，可以舉出有機金屬配合物如雙〔2-（2'-苯并〔4,5- α 〕噻吩基）吡啶-N,C^{3'}〕銱（III）乙醯丙酮鹽（簡稱：Ir（btp）₂（acac））、雙（1-苯基異喹啉-N,C^{2'}）銱（III）乙醯丙酮鹽（簡稱：Ir（piq）₂（acac））、（乙醯基丙酮）雙〔2,3-雙（4-氟苯基）苯并喹啉〕銱（III）（簡稱：Ir（Fdpq）₂（acac））、2,3,7,8,12,13,17,18-八乙基-21H,23H-卟啉鉑（II）（簡稱：PtOEP）等。

因為在實施方式 1 中表示的苯并喹啉衍生物具有電子傳輸性，藉由使用於發光層，可以成為具有高電子傳輸性的發光層。在使用具有高電子俘獲性的客體材料的情況下，可以獲得高效率的發光。

可以使用多種用於分散發光物質（客體材料）的物質

（主體材料）。因此，除了實施方式 1 所示的苯并喹啉衍生物之外，發光層還可以包含第二主體材料。

另外，本發明的並喹啉衍生物可以用於發光性的物質（客體材料）或單獨地使用。

第四層 114 是電子傳輸層，包含具有高電子傳輸性的物質。例如，對於第四層 114，可以使用金屬錯合物諸如 Alq、Almq₃、BeBq₂、BAlq、Znq、ZnPBO 及 ZnBTZ 等作為低分子有機化合物等。除了金屬錯合物之外，還可以使用雜環化合物諸如 PBD、OXD-7、TAZ、TPBI、BPhen 及 BCP 等。在此提到的物質主要是電子遷移率為 10^{-6} cm²/Vs 或以上的物質。注意，只要是其電子傳輸性高於電洞傳輸性，就可以使用上述物質之外的其他物質作為電子傳輸層。另外，除了單層結構之外，電子傳輸層還可以是上述物質構成的兩層以上的疊層。

作為第四層 114，也可以使用高分子化合物。例如，使用聚〔（9,9-二己基芴-2,7-二基）-共聚-（吡啶-3,5-二基）〕（簡稱 PF-Py）、聚〔（9,9-二辛基芴-2,7-二基）-共聚-（2,2'-聯吡啶-6,6'-二基）〕（簡稱：PF-BPy）等。

此外，第五層 115 是電子注入層，包含具有高電子注入性的物質。作為第五層 115，可以使用如氟化鋰（LiF）、氟化銫（CsF）和氟化鈣（CaF₂）等的鹼金屬、鹼土金屬、或它們的化合物。此外，還可以使用包含鹼金屬、鹼土金屬、或它們的化合物的具有電子傳輸性的物質，具體地說，使用含鎂（Mg）的 Alq 等。此時，來自第二電極

104 的電子注入會更高效率地進行。

作為第二電極 104，可以使用功函數小的（具體地說， 3.8 eV 或以下）的金屬、合金、導電化合物、及它們的混合物等。作為這種陰極材料的具體例子，可以舉出屬於元素週期表中的第 1 族或第 2 族的元素，即鹼金屬諸如鋰（Li）及銫（Cs）等；鹼土金屬諸如鎂（Mg）、鈣（Ca）及銦（Sr）等；含有這些元素的合金（MgAg、AlLi）；稀土金屬諸如銩（Eu）及鐿（Yb）等；以及含有它們的合金等。

注意，在使用鹼金屬、鹼土金屬、包含它們的合金形成第二電極 104 的情況下，可以採用真空蒸鍍法或濺射法。此外，在使用銀膏等的情況下，可以採用塗敷法或噴墨法等。

注意，藉由設置第五層 115，可以與功函數的大小無關地使用各種導電材料諸如 Al、Ag、ITO、含有矽或氧化矽的氧化銦-氧化錫等來形成第二電極 104。藉由濺射法、噴墨法、或旋塗法等形成這種導電材料。

此外，作為按順序層疊第一層（電洞注入層）111、第二層（電洞傳輸層）112、第三層（發光層）113、第四層（電子傳輸層）114、第五層（電子注入層）115 而形成的 EL 層 103 的製造方法，不論乾式法或濕式法，可以使用各種方法。例如，可以採用真空蒸鍍法、噴墨法、旋塗法等。此外，還可以對每個層採用不同的方法而形成。

除了濺射法及真空蒸鍍法等乾式法之外，還可以使

用金屬材料的膏劑的溶膠-凝膠法等的濕式法形成第二電極 104。

在上述本發明的發光元件中，第一電極 102 和第二電極 104 之間產生的電位差引起電流流過，而藉由電洞和電子在 EL 層 103 中再結合，使得發光元件發光。而且，該光經過第一電極 102 或第二電極 104 中的任何一方或雙方被提取到外部。因而，第一電極 102 或第二電極 104 中的任何一方或雙方成為具有透光性的電極。

注意，當只有第一電極 102 具有透光性時，如圖 2A 所示，EL 層 103 中產生的光經過第一電極 102 從基板 101 一側被提取。此外，當只有第二電極 104 具有透光性時，如圖 2B 所示，在 EL 層 103 中產生的光經過第二電極 104 從與基板 101 相反的一側被提取。再者，當第一電極 102 及第二電極 104 都具有透光性時，如圖 2C 中所示，在 EL 層 103 中產生的光經過第一電極 102 和第二電極 104 從基板 101 一側和與基板 101 相反的一側的雙方被提取。

注意，設置在第一電極 102 和第二電極 104 之間的層的結構不侷限於上述結構。只要具有作為電洞傳輸層的第二層 112 和作為發光層的第三層 113 的結構，就可以採用上述以外的結構。

此外，如圖 1B 所示，也可以採用在基板 101 上按順序層疊用作陰極的第二電極 104、EL 層 103、用作陽極的第一電極 102 的結構。注意，此時的 EL 層 103 採用如下結構，即在第二電極 104 上按順序層疊第五層 115、第四

層 114、第三層 113、第二層 112、以及第一層 111、第一電極 102。

注意，藉由使用本發明的發光元件，可以製造由被動矩陣型發光裝置及由薄膜電晶體（TFT）控制發光元件的驅動的主動矩陣型發光裝置。

注意，當製造主動矩陣型發光裝置時的 TFT 的結構並沒有特別限制。例如，可以適當地採用交錯型和反交錯型 TFT。另外，形成在 TFT 基板上的驅動電路既可以由 n 型和 p 型 TFT 構成，又可以由其中的某一種構成。再者，用於 TFT 的半導體膜的結晶性也並沒有特別限制，可以使用非晶半導體膜或結晶半導體膜。

在本實施方式 2 所示的發光元件中，使用具有雙極性的本發明的苯并噁唑衍生物形成第三層（發光層）113，可以提高電流效率等的元件效率。

注意，在本實施方式 2 中，可以適當地組合實施方式 1 所示的結構而使用。

實施方式 3

在本實施方式 3 中，參照圖 3 來說明一種發光元件，其中包括多個實施方式 2 所示的發光元件的 EL 層（下面，稱為疊層型元件）。該發光元件是在第一電極 301 和第二電極 302 之間具有多個 EL 層（第一 EL 層 303、第二 EL 層 304）的疊層型發光元件。注意，本實施方式 3 示出具有兩個 EL 層的情況，也可以具有三層以上。

在實施方式 3 中，第一電極 301 用作陽極，而第二電極 302 用作陰極。第一電極 301 及第二電極 302 可以採用與實施方式 2 同樣的結構。此外，作為多個 EL 層（第一 EL 層 303、第二 EL 層 304），可以採用與實施方式 2 所示的 EL 層同樣的結構。第一 EL 層 303 和第二 EL 層 304 可以具有相同的結構或不同的結構，作為該結構，可以採用與實施方式 2 同樣的結構。

另外，多個 EL 層（第一 EL 層 303、第二 EL 層 304）之間設置有電荷產生層 305。電荷產生層 305 具有當對第一電極 301 和第二電極 302 施加電壓時將電子注入到一個 EL 層，而將電洞注入到另一個 EL 層的功能。在本實施方式 3 中，當對第一電極 301 施加電壓以使得其電位比第二電極 302 的電位高時，從電荷產生層 305 到第一 EL 層 303 被注入電子，而到第二 EL 層 304 被注入電洞。

注意，考慮到光的提取效率，電荷產生層 305 較佳具有透光性。此外，即使其導電率比第一電極 301 和第二電極 302 低，電荷發光層 305 也起作用。

電荷產生層 305 可以採用具有高電洞傳輸性的物質添加有受體物質的結構或具有高電子傳輸性的物質添加有施體（donor）性質物質的結構。此外，還可以採用這兩種結構的疊層。

在採用具有高電洞傳輸性的物質添加有受體物質的結構的情況下，作為具有高電洞傳輸性的物質，例如可以使用芳族胺化合物如 4,4'-雙〔N-（1-萘基）-N-苯基胺基〕

聯苯（簡稱：NPB 或 α -NPD）、N,N'-雙（3-甲基苯基）-N,N'-二苯基-[1,1'-聯苯]-4,4'-二胺（簡稱：TPD）、4,4',4''-三（N,N-二苯基胺基）三苯基胺（簡稱：TDATA）、4,4',4''-三〔N-（3-甲基苯基）-N-苯基胺基〕三苯基胺（簡稱：MTDATA）、以及 4,4'-雙〔N-（螺-9,9'-聯茚-2-基）-N-苯基胺基〕聯苯（簡稱：BSPB）等。上述材料分別為主要具有 $10^{-6} \text{cm}^2/\text{Vs}$ 或以上的電洞遷移率的物質。但也可以使用除此之外的其他材料，而只要其電洞傳輸性高於電子傳輸性。

作為受體物質，可舉出 7,7,8,8-四氰基-2,3,5,6-四氰醌二甲烷（簡稱：F₄-TCNQ）、氰醌等。另外，可舉出過渡金屬氧化物。另外，可舉出屬於週期表中的第 4 族至第 8 族的金屬的氧化物。具體地，氧化鈮、氧化鋰、氧化鋇、氧化鉻、氧化鉬、氧化鎢、氧化錳、和氧化銻是較佳的，因為它們具有高電子接受性。其中，氧化鋇是尤其較佳的，因為它在大氣中穩定並且其吸濕性低，容易被處理。

另一方面，在採用具有高電子傳輸性的物質添加有施體物質的情況下，作為具有高電子傳輸性的物質，例如可以使用具有喹啉骨架或苯并喹啉骨架的金屬錯合物等，例如三（8-羥基喹啉）鋁（簡稱：Alq）、三（4-甲基-8-羥基喹啉）鋁（簡稱：Almq₃）、雙（10-羥基苯并[h]喹啉）鈹（簡稱：BeBq₂）、雙（2-甲基-8-羥基喹啉）（4-苯基苯酚）鋁（簡稱：BAIq）等。另外，也可以使用具有噁唑基配位體或噻唑基配位體的金屬錯合物等，如雙〔2-

(2-羥基苯基) 苯并噁唑] 鋅 (簡稱: $\text{Zn}(\text{BOX})_2$) 或雙 [2-(2-羥基苯基)-苯并噻唑] 鋅 (簡稱: $\text{Zn}(\text{BTZ})_2$) 等。除了金屬錯合物以外, 也可使用 2-(4-聯苯基)-5-(4-叔丁基苯基)-1,3,4-噁二唑 (簡稱: PBD)、1,3-雙 [5-(對叔丁基苯基)-1,3,4-噁二唑-2-基] 苯 (簡稱: OXD-7)、3-(4-聯苯基)-4-苯基-5-(4-叔丁基苯基)-1,2,4-三唑 (簡稱: TAZ)、紅啡啉 (簡稱: BPhen)、浴銅靈 (簡稱: BCP) 等。這裏所述的物質分別為主要具有 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 或以上的電子遷移率的物質。只要是電子的傳輸性比電洞傳輸性高的物質, 就可以使用除上述之外的其他物質。

此外, 作為施體物質, 可以使用鹼金屬、鹼土金屬、稀土金屬、屬於元素週期表中的第 13 族的金屬及其氧化物、或碳酸鹽。具體而言, 較佳使用鋰 (Li)、銫 (Cs)、鎂 (Mg)、鈣 (Ca)、鐿 (Yb)、銦 (In)、氧化鋰、碳酸銫等。另外, 也可以將有機化合物如四硫雜稠四苯 (tetrathianaphthacene) 用作施體物質。

注意, 藉由使用上述材料形成電荷產生層 305, 可以抑制當層疊 EL 層時的驅動電壓的上升。

在本實施方式 3 中, 雖然說明了具有兩個 EL 層的發光元件, 然而與此同樣, 也可以採用層疊有三個以上的 EL 層的發光元件。如根據實施方式 3 的發光元件, 可以藉由由電荷產生層使多個 EL 層間隔並將它們配置在一對電極之間, 在保持低電流密度的同時, 可以實現高亮度區

域中的使用壽命長的元件。此外，在採用照明作為應用例子時，因為可以減少因電極材料的電阻導致的電壓下降，所以可以實現大面積的均勻發光。此外，可以實現能夠進行低電壓驅動的低耗電量的發光裝置。

另外，藉由使各個 EL 層的發光顏色不相同，可以在發光元件的整體上獲得所希望顏色的發光。例如，在具有兩個 EL 層的發光元件中，藉由使第一 EL 層的發光顏色和第二 EL 層的發光顏色處於互補色的關係，也可以獲得在發光元件的整體上進行白色發光的發光元件。注意，互補色是指一種顏色之間的關係，在該互補色混合時呈現無彩色。也就是說，可以藉由混合從發射互補色光的物質中得到的光來得到白色發光。

另外，具有三個 EL 層的發光元件也與上述情況類似，例如，在第一 EL 層的發光顏色為紅色、第二 EL 層的發光顏色為綠色、第三 EL 層的發光顏色為藍色的情況下，在發光元件的整體上可以獲得白色發光。

注意，在本實施方式 3 中，可以適當地組合實施方式 1 及實施方式 2 所示的結構而使用。

實施方式 4

在本實施方式 4 中，參照圖 4A 和 4B 說明像素部具有本發明的發光元件的發光裝置。圖 4A 是示出發光裝置的俯視圖，而圖 4B 是沿著線 A-A'以及 B-B'截斷圖 4A 而獲得的截面圖。

在圖 4A 中，由虛線表示的圖號 401 是驅動電路部（源極側驅動電路部）、圖號 402 是像素部、圖號 403 是驅動電路部（閘極側驅動電路部）。此外，圖號 404 表示密封基板，圖號 405 表示密封材料，由密封材料 405 圍繞的內側成為空間 407。

另外，引導佈線 408 是用來傳送被輸入到源極側驅動電路 401 及閘極側驅動電路 403 的信號的佈線，從作為外部輸入端子的 FPC（撓性印刷電路）409 接收視頻信號、時鐘信號、起始信號、重定信號等。另外，雖然這裏僅圖示了 FPC，但該 FPC 也可以安裝有印刷線路板（PWB）。本說明書中的發光裝置除了發光裝置主體以外，還包括安裝有 FPC 或 PWB 的狀態。

接下來，參照圖 4B 說明截面結構。在元件基板 410 上形成有驅動電路部及像素部，這裏示出了作為驅動電路部的源極側驅動電路 401 和像素部 402 中的一個像素。另外，在源極側驅動電路 401 中，形成組合了 n 通道型 TFT 423 和 p 通道型 TFT 424 的 CMOS 電路。此外，驅動電路也可以使用各種 CMOS 電路、PMOS 電路或者 NMOS 電路來形成。此外，雖然在本實施方式 4 中示出了在基板上形成有驅動電路的驅動器一體型，但是這並不是必須的，也可以將驅動電路形成在外部而不是形成在基板上。

此外，像素部 402 由包括開關 TFT 411、電流控制 TFT 412、電連接到該電流控制 TFT 412 之汲極的第一電極 413 的多個像素形成。另外，以覆蓋第一電極 413 的端

部的方式形成絕緣物 414。

此外，較佳地是，為獲得良好的被覆性而在絕緣物 414 的上端部或下端部形成具有曲率的曲面。例如，藉由使用正型感光性丙烯酸系材料作為絕緣物 414 的材料的情況下，可以只使絕緣物 414 的上端部成為具有曲率半徑（ $0.2\mu\text{m}$ 至 $3\mu\text{m}$ ）的曲面。此外，作為絕緣物 414，可以使用藉由照射光而對蝕刻劑呈不溶解性的負型感光材料或藉由照射光而對蝕刻劑呈溶解性的正型感光材料。

在第一電極 413 上分別形成有 EL 層 416 以及第二電極 417。在此，作為用於第一電極 413 的材料，可以使用各種金屬、合金、導電化合物、以及它們的混合物。另外，作為具體的材料，可以使用實施方式 2 所示的可以用於第一電極的材料。

此外，EL 層 416 藉由使用蒸鍍掩模的蒸鍍法、噴墨法、旋塗法等各種方法來形成。EL 層 416 可以具有實施方式 2 所示的結構。此外，作為構成 EL 層 416 的其他材料，也可以使用低分子化合物或高分子化合物（包括低聚物、樹枝狀聚合物）。另外，作為用於 EL 層的材料，不僅可以使用有機化合物，還可以使用無機化合物。

另外，作為用於第二電極 417 的材料，可以使用各種金屬、合金、導電化合物、以及它們的混合物。在將第二電極 417 用作陰極的情況下，較佳使用功函數小的（功函數為 3.8eV 或以下）的金屬、合金、導電化合物、以及它們的混合物等。例如，可以舉出屬於元素週期表中的第 1

族或第 2 族的元素，即鋰（Li）或銫（Cs）等的鹼金屬；鎂（Mg）、鈣（Ca）或銦（Sr）等的鹼土金屬；以及包含它們的合金（MgAg、AlLi）等。

注意，當採用在 EL 層 416 產生的光透過第二電極 417 的結構時，作為第二電極 417，還可以使用減薄了厚度的金屬薄膜和透明導電膜（氧化銦-氧化錫（ITO）、含矽或氧化矽的氧化銦-氧化錫、氧化銦-氧化鋅（IZO）、含氧化鎢及氧化鋅的氧化銦等）的疊層。

另外，藉由使用密封材料 405 將密封基板 404 和元件基板 410 貼合在一起，形成在由元件基板 410、密封基板 404 以及密封材料 405 圍繞而成的空間 407 中具有發光元件 418 的結構。另外，在空間 407 中填充有填充劑，除了填充惰性氣體（氮或氬等）的情況以外，還有填充密封材料 405 的情況。

另外，對於密封材料 405 較佳使用環氧類樹脂。此外，這些材料較佳為盡可能地不透過水分、氧的材料。此外，作為用於密封基板 404 的材料，除了玻璃基板、石英基板以外，還可以使用由 FRP（Fiberglass-Reinforced Plastics；玻璃纖維強化塑膠）、PVF（聚氟乙烯）、聚酯或丙烯酸系材料等構成的塑膠基板。

以上述方式，可以獲得具有本發明的發光元件的主動矩陣型發光裝置。

此外，本發明的發光元件不僅用於上述主動矩陣型發光裝置，而且還可以用於被動矩陣型發光裝置。圖 5A 和

5B 示出使用本發明的發光元件的被動矩陣型發光裝置的透視圖及截面圖。注意，圖 5A 是示出發光裝置的透視圖，而圖 5B 是沿著線 X-Y 截斷圖 5A 而獲得的截面圖。

在圖 5A 和 5B 中，在基板 501 上，在第一電極 502 和第二電極 503 之間設置有 EL 層 504。第一電極 502 的端部被絕緣層 505 覆蓋。並且，在絕緣層 505 上提供有隔斷層 506。隔斷層 506 的側壁傾斜，其隨著接近於基板表面，一個側壁和另一個側壁之間的間隔變窄。換言之，隔斷層 506 的短邊方向的截面為梯形，底邊（朝與絕緣層 505 的面方向同樣的方向並且與絕緣層 505 接觸的邊）比上邊（朝與絕緣層 505 的面方向同樣的方向並且不與絕緣層 505 接觸的邊）短。像這樣，藉由提供隔斷層 506，可以防止起因於靜電等的發光元件的缺陷。

以上述方式，可以獲得具有本發明的發光元件的被動矩陣型發光裝置。

注意，本實施方式所示的發光裝置（主動矩陣型、被動矩陣型）都使用本發明的具有高電流效率的發光元件形成，所以可以獲得減少了耗電量的發光裝置。

注意，在實施方式 4 中，可以適當地組合實施方式 1 至 3 所示的結構而使用。

實施方式 5

在本實施方式 5 中，對於在其一部分包括實施方式 4 所示的本發明的發光裝置的電子裝置進行說明。作為這種

電子裝置，可以舉出影像拍攝裝置如攝影機及數位相機等、護目鏡型顯示器、導航系統、聲音再現裝置（汽車音響、身歷聲組合音響等）、電腦、遊戲機、可攜式資訊終端（可攜式電腦、移動電話、可攜式遊戲機或電子圖書等）、具有記錄介質的圖像再現裝置（具體為再現數位通用光碟（DVD）等記錄介質且具有可以顯示其圖像的顯示裝置的裝置）等。圖 6A 至 6D 示出這些電子裝置的具體例子。

圖 6A 是根據本發明製造的電視裝置，包括框體 611、支撐台 612、顯示部 613、揚聲器部 614、視頻輸入端子 615 等。在該電視裝置中，顯示部 613 可以應用本發明的發光裝置。本發明的發光裝置具有低驅動電壓的特徵，因此藉由應用本發明的發光裝置，可以獲得減少了耗電量的電視裝置。

圖 6B 是根據本發明製造的電腦，包括主體 621、框體 622、顯示部 623、鍵盤 624、外部連接埠 625、定點裝置 626 等。在該電腦中，顯示部 623 可以應用本發明的發光裝置。本發明的發光裝置具有低驅動電壓的特徵，因此藉由應用本發明的發光裝置，可以獲得減少了耗電量的電腦。

圖 6C 是根據本發明製造的移動電話，包括主體 631、框體 632、顯示部 633、聲音輸入部 634、聲音輸出部 635、操作鍵 636、外部連接埠 637、天線 638 等。在該移動電話中，顯示部 633 可以應用本發明的發光裝置。本發

明的發光裝置具有低驅動電壓的特徵，因此藉由應用本發明的發光裝置，可以獲得減少了耗電量的移動電話。

圖 6D 是根據本發明製造的影像拍攝裝置，包括主體 641、顯示部 642、框體 643、外部連接埠 644、遙控接收部 645、影像接收部 646、電池 647、聲音輸入部 648、操作鍵 649、取景部 650 等。在該影像拍攝裝置中，顯示部 642 可以應用本發明的發光裝置。本發明的發光裝置具有低驅動電壓的特徵，因此藉由應用本發明的發光裝置，可以獲得減少了耗電量的影像拍攝裝置。

如上所述，本發明的發光裝置的應用範圍很廣泛，將該發光裝置可以應用於各種領域的電子裝置。藉由使用本發明的發光裝置，可以獲得減少了耗電量的電子裝置。

此外，本發明的發光裝置也可以用作照明設備。圖 7 是將本發明的發光裝置用作背光燈的液晶顯示裝置的一個例子。圖 7 所示的液晶顯示裝置包括框體 701、液晶層 702、背光燈 703 以及框體 704，液晶層 702 與驅動器 IC 705 連接。此外，作為背光燈 703 使用本發明的發光裝置，藉由端子 706 供應電流。

藉由將本發明的發光裝置用作液晶顯示裝置的背光燈，可以獲得耗電量低的背光燈。此外，本發明的發光裝置是面發光的照明設備，也可以實現大面積化，因此可以獲得實現低耗電量和大面積的液晶顯示裝置。

圖 8 是將應用本發明的發光裝置用作照明設備的桌燈的例子。圖 8 所示的桌燈包括框體 801 和光源 802，將本

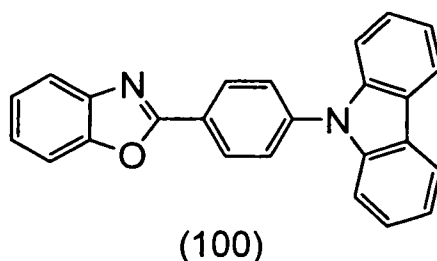
發明的發光裝置用作光源 802。本發明的發光裝置具有低驅動電壓的發光元件，所以可以用作低耗電量的桌燈。

圖 9 為將應用本發明的發光裝置用作室內照明設備 901 的例子。由於本發明的發光裝置也可以實現大面積化，所以可以用作大面積的照明設備。此外，本發明的發光裝置由於具有低驅動電壓的發光元件，因此可以用作低耗電量的照明設備。像這樣，可以在將應用本發明的發光裝置用作室內照明設備 901 的房間內設置如圖 6A 所說明的本發明的電視裝置 902，來欣賞廣播或電影。

注意，在本實施方式 5 中，可以適當地組合實施方式 1 至 5 所示的結構而使用。

實施例 1

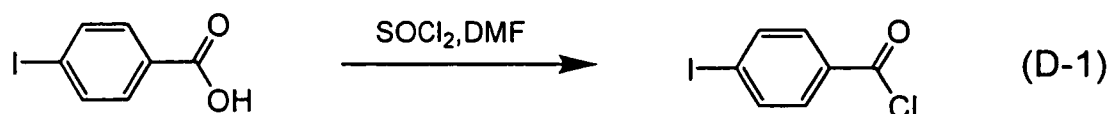
在本實施例 1 中，具體地說明以結構式 (100) 表示的本發明的苯并噁唑衍生物的 9-[4-(苯并噁唑-2-基)苯基]-9H-咔唑 (簡稱：CzBOx) 的合成方法。



步驟 1：2-(4-碘苯基)苯并噁唑的合成

(i) 4-碘苯甲醯氯的合成

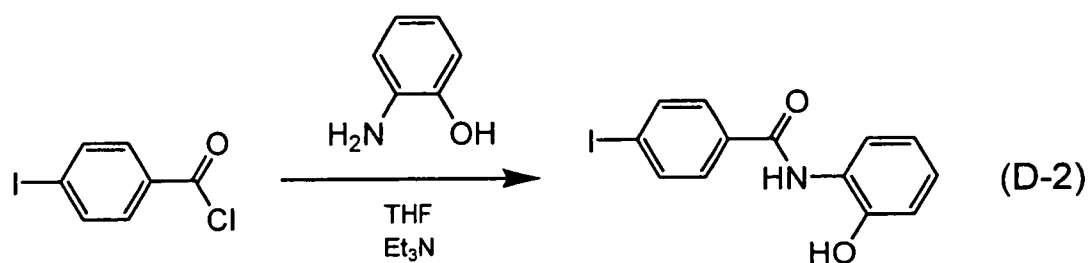
在 (D-1) 中表示 4-碘苯甲醯氯的合成圖解。



將 4-碘苯甲酸 25 g (0.10 mmol) 放在 200 mL 三頸燒瓶中，並且添加亞硫醯氯 70 mL、3 滴 N,N-二甲基甲醯胺 (DMF)。在氮氣氣流下，將該混合物在 80℃ 中攪拌三個小時。在攪拌之後，減壓蒸餾反應溶液以去除該反應溶液中的亞硫醯氯，獲得淡黃色油狀物質。

(ii) 4-碘 -N- (2-羥基苯基) 苯甲醯胺的合成

在 (D-2) 中表示 4-碘 -N- (2-羥基苯基) 苯甲醯胺的合成圖解。

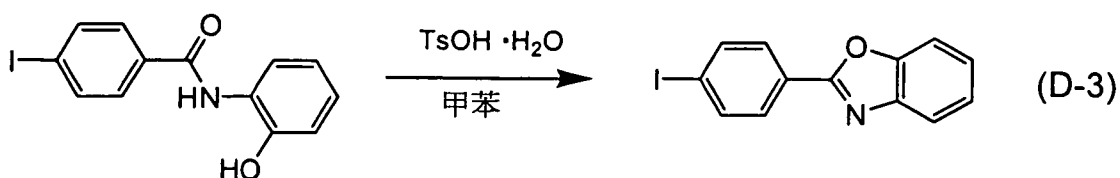


將 2-氨基苯酚 10 g (92 mmol) 和三乙胺 7.0 mL 放在 300 mL 三頸燒瓶中，添加四氫呋喃 (THF) 100 mL。將該溶液在 0℃ 下攪拌 20 分鐘。在攪拌之後，滴加 4-碘苯甲醯氯 (0.10 mol) 和四氫呋喃 (簡稱：THF) 100 mL 的混合溶液。在氮氣氣流下，將該溶液在 0℃ 中攪拌 5 小時。在攪拌之後，將該溶液添加到大約 300 mL 的水中，並且使用乙酸乙酯萃取。在萃取之後，將有機層和萃取液合併，依次使用 1M 的鹽酸、飽和碳酸氫鈉水溶液及飽和食鹽水洗滌。在洗滌之後，對有機層添加硫酸鎂進行乾燥。在乾燥

之後，使用矽藻土（Celite，日本和光純藥工業株式會社、目錄號碼：531-16855）對該混合物進行抽濾，獲得濾液。濾液濃縮獲得固體。使用乙酸乙酯和己烷的混合溶劑使該固體再結晶，以在合成圖解（D-1）（D-2）的兩個階段中 97% 的產率獲得收量 30g 的粉末狀的白色固體。

（iii）2-（4-碘苯基）苯并呋唑的合成

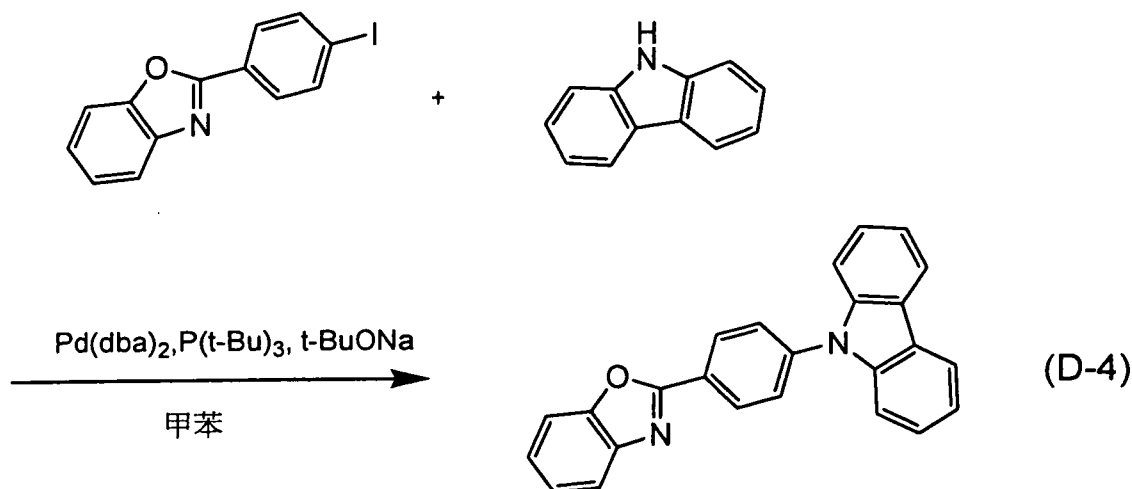
在（D-3）中表示 2-（4-碘苯基）苯并呋唑的合成圖解。



將 4-碘-N-（2-羥基苯基）苯甲醯胺 15g（44mmol）和對甲苯磺酸一水合物 24g（0.14mol）放在 300mL 三頸燒瓶中，來將該燒瓶內進行氮氣置換。對該混合物添加甲苯 300mL。在氮氣氣流下且在 110℃ 中攪拌該混合物 4 小時。在攪拌之後，將該反應混合物添加到大約 300mL 的水中，並且使用乙酸乙酯萃取該混合物的水層。在萃取之後，將有機層和萃取液合併，依次使用飽和碳酸氫鈉水溶液、飽和食鹽水洗滌。在洗滌之後，對有機層添加硫酸鎂乾燥。在乾燥之後，使用矽藻土對該混合物進行抽濾，獲得濾液。濾液濃縮獲得固體。使用乙酸乙酯和己烷的混合溶劑使該固體再結晶，以 75% 的產率獲得收量 11g 的粉末狀的白色固體。

步驟 2：9-〔4-（苯并呋唑-2-基）苯基〕-9H-呋唑（簡稱：CzBOx）的合成

在（D-4）中表示 9-〔4-（苯并呋唑-2-基）苯基〕-9H-呋唑（簡稱：CzBOx）的合成圖解。



將 2-（4-碘苯基）苯并呋唑 1.5 g（4.7 mmol）、9H-呋唑 0.78 g（4.7 mmol）及叔丁醇鈉 0.99 g（10 mmol）放在 100 mL 三頸燒瓶中，來對該燒瓶內進行氮氣置換。在對該混合物添加甲苯 15 mL，並對該混合物進行減壓脫氣之後，對該燒瓶內進行氮氣置換。對該混合物添加三（叔丁基）膦的 10% 己烷溶液 0.10 mL、雙（二亞苄基丙酮）鈰（0）0.030 g（0.48 mmol），在氮氣氣流下且在 110℃ 中攪拌 11 小時。在攪拌之後，對該混合物添加甲苯，對該懸浮液依次使用 1M 的稀鹽酸、飽和碳酸氫鈉水溶液和飽和食鹽水進行洗滌。在洗滌之後，對有機層添加硫酸鎂進行乾燥。在乾燥之後，對該混合物進行抽濾，獲得濾液。使用矽藻土（日本和光純藥工業株式會社、目錄號碼：531-

16855) 對獲得了的濾液進行抽濾，獲得濾液。對獲得了的濾液進行濃縮並藉由利用矽膠管柱層析法進行純化。首先藉由使用甲苯：己烷 = 1：1 的混合溶劑作為展開溶劑，然後將甲苯用作展開溶劑進行該管柱層析法。將所得流分 (fraction) 濃縮得到固體。使用氯仿和甲醇的混合溶劑使該固體再結晶，以 89% 的產率獲得收量 1.5 g 的粉末狀的白色固體。

藉由梯度昇華方法進行獲得了的 1.5 g 的白色固體的昇華純化。在如下條件下進行昇華純化：在 7.0 Pa 的減壓下，將氬的流量設定為 4 mL/min 並在 170°C 中進行 18 小時。收量為 1.1 g，而產率為 72%。

此外，藉由核磁共振 (NMR) 法測定在上述步驟 2 中獲得的化合物。下面示出測定資料。¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) : δ = 7.29-7.55 (m, 8H), 7.61-7.67 (m, 1H), 7.74-7.85 (m, 3H), 8.16 (d, J=7.3 Hz, 2H), 8.51 (d, J=8.3 Hz, 2H)。

另外，在圖 11A 和 11B 中表示 ¹H NMR 圖。注意，圖 11B 是將圖 11A 中的 7 ppm 至 9 ppm 的範圍放大表示的圖。根據測定結果，可知獲得以上述結構式 (100) 表示的本發明的苯并喹啉衍生物的 9-[4-(苯并喹啉-2-基)苯基]-9H-喹啉 (簡稱：CzBOx)。

另外，圖 12A 中表示 CzBOx 的甲苯溶液的吸收光譜，在圖 12B 中表示 CzBOx 的薄膜的吸收光譜。測定中使用紫外可見分光光度計 (日本分光株式會社製、V-550 型

)。藉由將 CzBOx 的甲苯溶液放在石英比色皿中測定，並減去了石英和甲苯的吸收光譜，來進行甲苯溶液中的 CzBOx 的吸收光譜的測定。另外，藉由將 CzBOx 蒸鍍在石英基板上而製造樣品，並減去了石英的吸收光譜，來進行 CzBOx 的薄膜的吸收光譜的測定。

在圖 12A 及圖 12B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示吸收強度 (任意單位)。在 CzBOx 在甲苯溶液中的情況下，在 342nm 附近觀察到吸收峰值，在 CzBOx 為薄膜的情況下，在 346nm 附近觀察到吸收峰值。另外，在圖 12A 中表示 CzBOx 的甲苯溶液 (激發波長為 333nm) 的發光光譜。另外，在圖 12B 中表示 CzBOx 的薄膜 (激發波長為 345nm) 的發光光譜。在圖 12A 及圖 12B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示發光強度 (任意單位)。 CzBOx 在甲苯溶液中的情況下，最大發光波長為 388nm (激發波長為 333nm)，在 CzBOx 為薄膜的情況下，最大發光波長為 422nm (激發波長為 345nm)。

此外，藉由利用大氣中的光電子分光法 (日本理研計器株式會社製造的 AC-2) 測定在 CzBOx 處於薄膜狀態時的電離電位的結果為 5.88eV。其結果是，可知 HOMO 能級為 -5.88eV。再者，藉由使用 CzBOx 的薄膜的吸收光譜的資料，並從假定直接躍遷的 Tauc 曲線找到吸收端，且以該吸收端為光學能隙進行預測，結果該能隙為 3.30eV。根據所獲得的能隙值和 HOMO 能級來算出的 LUMO 能級為 -2.58eV。

此外，測定了 CzBOx 的氧化還原反應特性。氧化還原反應特性藉由迴圈伏安測量法（CV）測定考察。另外，在測定中使用電化學分析器（ALS600A 型，BAS 株式會社（BAS Inc.）製）。

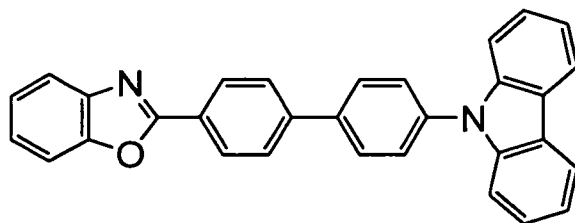
在 CV 測定的溶液中，作為溶劑使用脫水二甲基甲醯胺（DMF）（99.8%，西格瑪奧德里奇公司製，目錄號碼：22705-6），使作為支持電解質的過氯酸四正丁基銨（ $n\text{-Bu}_4\text{NClO}_4$ ）（東京化成工業株式會社（Tokyo Chemical Industry Co., Ltd.）製，目錄號碼：T0836）溶解，以使其到達 100mmol/L 的濃度。另外，使作為測量對象的 CzBOx 溶解，以使其到達 2mmol/L 的濃度。另外，作為工作電極使用鉑電極（PTE 鉑電極，BAS 株式會社（BAS Inc.）製），作為輔助電極使用鉑電極（VC-3 用 Pt 對電極（5cm），BAS 株式會社（BAS Inc.）製），作為參考電極使用 Ag/Ag^+ 電極（RE7 非水溶劑類參考電極，BAS 株式會社（BAS Inc.）製）。另外，測定在室溫下進行。

如下對 CzBOx 的氧化反應特性進行考察。以使相對於參考電極的工作電極的電位從 -0.27V 變化為 1.20V 之後、從 1.20V 變化為 -0.27V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，如下對 CzBOx （簡稱）的還原反應特性進行考察。以使工作電極相對於參考電極的電位從 -1.68V 變化為 -2.45V 之後、從 -2.45V 變化為 -1.68V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，將 CV 測定的掃描速度設定為 0.1V/s 。

根據測定的結果，即使反復進行了 100 個週期測定之後，也在氧化還原反應中幾乎沒有發現 CV 曲線的峰位置和峰強度的變化。由此可知，本發明的苯并呿唑衍生物的 $CzBOx$ 對於反復進行的氧化還原反應是極為穩定的。

實施例 2

在本實施例 2 中，具體地說明以結構式 (200) 表示的本發明的苯并呿唑衍生物的 9-〔4'- (苯并呿唑-2-基) 聯苯-4-基〕-9H-呿唑 (簡稱： $CzPBOx$) 的合成方法。

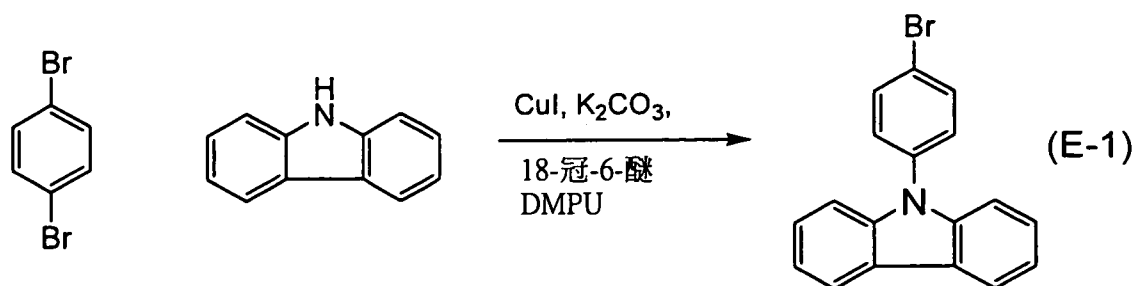


(200)

步驟 1：4- (9H-呿唑-9-基) 苯基硼酸的合成

(i) 9- (4-溴苯基) -9H-呿唑的合成

在 (E-1) 中表示 9- (4-溴苯基) -9H-呿唑的合成圖解。

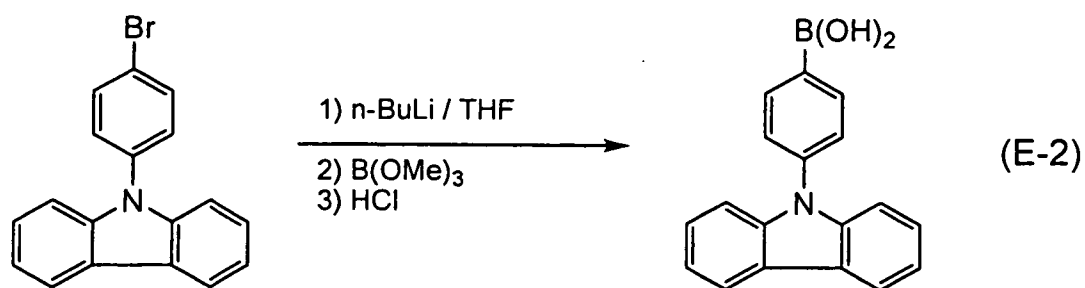


將 1,4-二溴苯 56 g (240mmol) 、 9H-呿唑 31 g (180mmol) 及碘化銅 (I) 4.6 g (24mmol) 、 2.1 g (8.0mmol) 的 18-冠-6-醚、碳酸鉀 66 g (480mmol) 、 1,3-

二甲基-3,4,5,6-四氫-2(1H)-嘧啶酮(簡稱:DMPU) 8 mL 放在 300 mL 三頸燒瓶中。在氮氣氣流下且在 180°C 下攪拌該混合物 6 小時。在攪拌之後,將該混合物過濾,將獲得了的濾液依次使用稀鹽酸、飽和碳酸氫鈉水溶液和飽和食鹽水進行洗滌。對有機層添加硫酸鎂進行乾燥。對該混合物進行過濾,濾液濃縮,藉由利用矽膠管柱層析法(展開溶劑 己烷:乙酸乙酯=9:1)純化化合物。將所得流分(fraction)濃縮得到固體。使用氯仿和己烷的混合溶劑使該化合物再結晶,以 35% 的產率獲得收量 21 g 的目的物的淡褐色片狀結晶。

(ii) 4-(9H-呋唑-9-基)苯基硼酸的合成

在(E-2)中表示 4-(9H-呋唑-9-基)苯基硼酸的合成圖解。

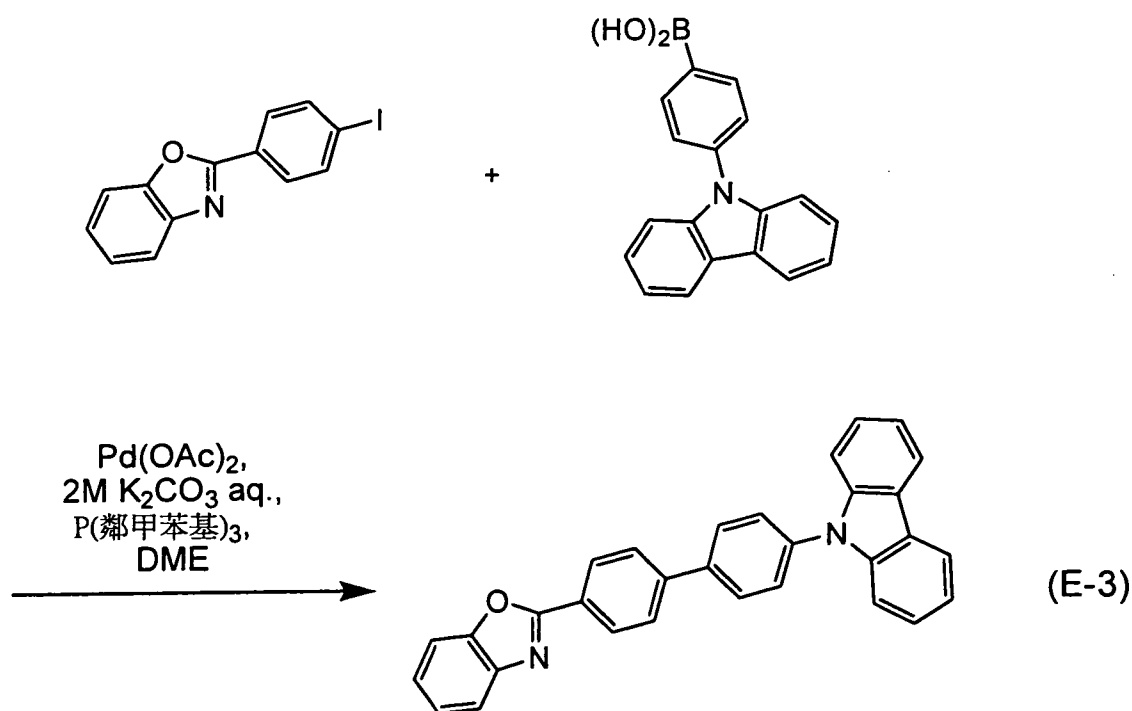


將 9-(4-溴苯基)-9H-呋唑 21.8 g (67.5 mmol) 放在 500 mL 三頸燒瓶中,並且對該燒瓶內進行氮氣置換,添加四氫呋喃(THF) 200 mL。在將該溶液成為 -78°C 之後,滴加正丁基鋰(1.52 mol/L 己烷溶液) 48.9 mL (74.3 mmol),並且在相同溫度中攪拌 2 小時。然後,添加硼酸三甲酯 17.4 mL (155 mmol),並且在相同溫度中攪拌 1 小時後,

將溫度返回到室溫的同時攪拌 24 小時。然後，將 200 mL 的 1.0 mol/L 鹽酸添加到該溶液中，並且在室溫下攪拌 1 小時。利用水洗滌混合物的有機層，並且使用乙酸乙酯萃取水層。在將萃取溶液和有機層合併，使用飽和鹽水進行洗滌之後，利用硫酸鎂進行乾燥。在乾燥之後，抽濾該混合物，濃縮濾液得出殘留物。藉由利用氯仿和己烷的混合溶劑使獲得的殘留物再結晶，以 66% 的產率獲得 13 g 的目的物的 4-（9H-咔唑-9-基）苯基硼酸的白色粉末狀固體。

步驟 2：9-〔4'-（苯并呋唑-2-基）聯苯-4-基〕-9H-咔唑（簡稱：CzPBOx）的合成

在（E-3）中表示 9-〔4'-（苯并呋唑-2-基）聯苯-4-基〕-9H-咔唑（簡稱：CzPBOx）的合成圖解。



將 2-（4-碘苯基）苯并呋唑 1.0 g（3.1 mmol）、4-（9H-咔唑-9-基）苯基硼酸 0.90 g（3.1 mmol）、三（鄰甲苯

基) 膦 0.067 g (0.22 mmol) 放在 100 mL 三頸燒瓶中。在對該混合物添加 1,2-二甲氧基乙烷 (簡稱: DME) 30 mL 和 2 M 的碳酸鉀水溶液 30 mL, 並且對該混合物進行減壓脫氣之後, 對該燒瓶內進行氮氣置換。對該混合物添加醋酸鈮 (II) 7.0 mg (0.031 mmol), 並且在 90°C 中對該混合物進行加熱攪拌 5 小時。在攪拌之後, 對該混合物添加甲苯, 將有機層依次使用飽和碳酸氫鈉水溶液、飽和食鹽水進行洗滌。在洗滌之後, 對有機層添加硫酸鎂進行乾燥。在乾燥之後, 對該混合物進行抽濾, 獲得濾液。使用矽藻土 (日本和光純藥工業株式會社、目錄號碼: 531-16855) 對獲得了的濾液進行抽濾, 獲得濾液。對獲得了的濾液進行濃縮並藉由利用矽膠管柱層析法進行純化。藉由將甲苯用作展開溶劑進行該色譜法。將所得流分 (fraction) 濃縮得到固體。使用氯仿和甲醇的混合溶劑使該固體再結晶, 以 88% 的產率獲得收量 1.2 g 的粉末狀的白色固體。

藉由梯度昇華方法進行獲得了的 1.2 g 的白色固體的昇華純化。在如下條件下進行昇華純化: 在 7.0 Pa 的減壓下, 將氬的流量設定為 4 mL/min 並在 220°C 中進行 19 小時。收量為 1.1 g, 而產率為 90%。

此外, 藉由核磁共振 (NMR) 法測定在上述步驟 2 中獲得的化合物。下面示出測定資料。¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz): δ = 7.27-7.52 (m, 8H), 7.59-7.64 (m, 1H), 7.69 (d, J=8.3 Hz, 2H), 7.79-7.92 (m, 5H), 8.17 (d, J=7.8 Hz, 2H)、8.40 (d, J=8.3 Hz, 2H)。

另外，在圖 13A 和 13B 中表示 ^1H NMR 圖。注意，圖 13B 是將圖 13A 中的 7ppm 至 8.5ppm 的範圍放大表示的圖。根據測定結果，可知獲得以上述結構式 (200) 表示的本發明的苯并噁唑衍生物的 9-[4'-(苯并噁唑-2-基)聯苯-4-基]-9H-咔唑 (簡稱：CzPBOx)。

另外，圖 14A 中表示 CzPBOx 的甲苯溶液的吸收光譜，在圖 14B 中表示 CzPBOx 的薄膜的吸收光譜。測定中使用紫外可見分光光度計 (日本分光株式會社製、V-550 型)。藉由將 CzPBOx 的甲苯溶液放在石英比色皿中測定，並減去了石英和甲苯的吸收光譜，來進行甲苯溶液中的 CzPBOx 的吸收光譜的測定。另外，藉由將 CzPBOx 蒸鍍在石英基板上而製造樣品，並減去了石英的吸收光譜，來進行 CzPBOx 的薄膜的吸收光譜的測定。

在圖 14A 及圖 14B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示吸收強度 (任意單位)。在甲苯溶液的情況下，在 339nm 附近觀察到吸收峰值，在薄膜的情況下，在 345nm 附近觀察到吸收峰值。另外，在圖 14A 中表示 CzPBOx 的甲苯溶液 (激發波長為 345nm) 的發光光譜。另外，在圖 14B 中表示 CzPBOx 的薄膜 (激發波長為 363nm) 的發光光譜。在圖 14A 及圖 14B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示發光強度 (任意單位)。在甲苯溶液的情況下，最大發光波長為 397nm (激發波長為 345nm)，在薄膜的情況下，最大發光波長為 428nm (激發波長為 363nm)。

此外，藉由利用大氣中的光電子分光法 (日本理研計

器株式會社製造的 AC-2) 測定在 CzPBOx 處於薄膜狀態時的電離電位的結果為 5.76 eV。結果，可知 HOMO 能級為 -5.79 eV。再者，藉由使用在 CzPBOx 的薄膜的吸收光譜的資料，並從假定直接躍遷的 Tauc 曲線找到吸收端，且以該吸收端為光學能隙進行預測，結果該能隙為 3.32 eV。根據所獲得的能隙值和 HOMO 能級來算出的 LUMO 能級為 -2.44 eV。

另外，藉由使用與實施例 1 同樣的方法測定 CzPBOx 的氧化還原反應特性。具體而言，以使相對於參考電極的工作電極的電位從 1.10V 變化為 0.20V 之後、從 0.20V 變化為 1.10V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，對還原反應特性進行考察。以使相對於參考電極的工作電極的電位從 -1.39V 變化為 -2.35V 之後、從 -2.35V 變化為 -1.39V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，將 CV 測定的掃描速度設定為 0.1 V/s。

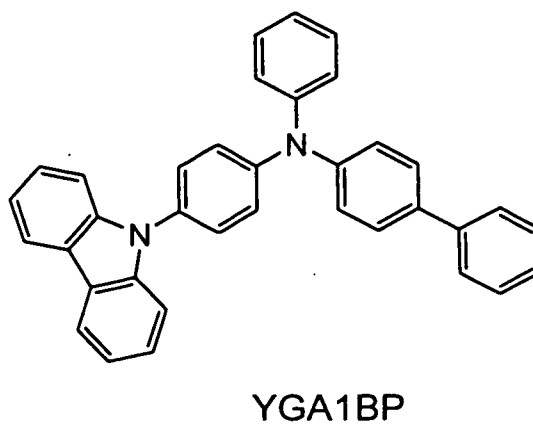
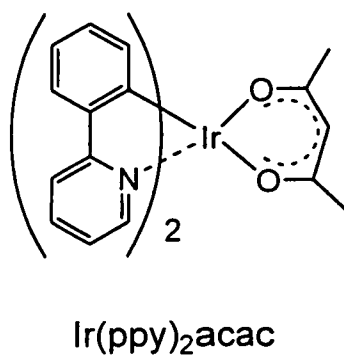
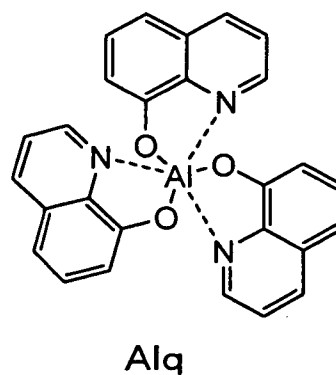
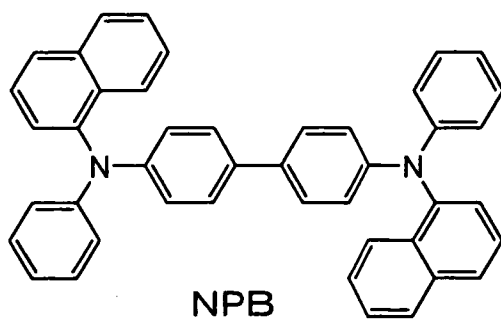
根據測定的結果，即使反復進行了 100 個週期測定之後，也在氧化還原反應中幾乎沒有發現 CV 曲線的峰位置和峰強度的變化。由此可知，本發明的苯并噁唑衍生物的 CzPBOx 對於反復進行的氧化還原反應是極為穩定的。

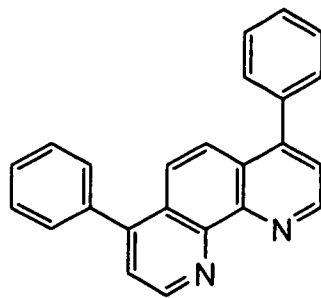
實施例 3

在本實施例中表示將實施方式 1 所記載的苯并噁唑衍生物用作發光層的主體材料的發光元件的製造方法及元件特性的測定結果。具體而言，示出發光元件 1 和發光元件

2，該發光元件 1 是使用了在實施例 1 中說明的 9-[4-(苯并呋啞-2-基)苯基]-9H-呋啞(簡稱：CzBOx)形成的，並且該發光元件 2 是使用了在實施例 2 中說明的 9-[4'-(苯并呋啞-2-基)聯苯-4-基]-9H-呋啞(簡稱：CzPBOx)形成的。

注意，本實施例 3 中的發光元件的元件結構是圖 10 所示的結構，它是將上述的本發明的苯并呋啞衍生物用於發光層 1513 而形成的。下面示出本實施例 3 所使用的有機化合物的結構式。





Bphen

首先，藉由濺射法在作為玻璃基板的基板 1501 上形成包含氧化矽的氧化銦-氧化錫，從而形成第一電極 1502。注意，第一電極 1502 的厚度為 110nm，並其電極面積為 2mm×2mm。

接著，在第一電極 1502 上形成層疊有多個層的 EL 層 1503。在本實施例 3 中，EL 層 1503 具有作為電洞注入層的第一層 1511、作為電洞傳輸層的第二層 1512、作為發光層的第三層 1513、作為電子傳輸層的第四層 1514、作為電子注入層的第五層 1515 的順序層疊的結構。

以使形成有第一電極 1502 的基板表面向下的方式，將形成有第一電極 1502 的基板 1501 固定在設置在真空蒸鍍裝置中的基板支架上，並且減壓到大約 10^{-4} Pa，然後藉由將 4,4'-雙〔N-（1-萘基）-N-苯基胺基〕聯苯（簡稱：NPB）和氧化鉬（VI）共蒸鍍在第一電極 1502 上，來形成作為電洞注入層的第一層 1511。將第一層 1511 的厚度設定為 40nm，並且調節蒸鍍速率，以便使 NPB 和氧化鉬（VI）的質量比為 4：1（=NPB：氧化鉬）。注意，共蒸鍍法是指在一個處理室內從多個蒸發源同時進行蒸鍍的方法。

接著，藉由使用電阻加熱的蒸鍍法在第一層 1511 上以 20nm 的厚度形成電洞傳輸材料，來形成作為電洞傳輸層的第二層 1512。注意，作為第二層 1512 使用 4-（9H-咔唑-9-基）-4'-苯基三苯基胺（簡稱：YGA1BP）。

接著，藉由使用電阻加熱的蒸鍍法在第二層 1512 上形成作為發光層的第三層 1513。注意，在形成發光元件 1 的情況下，藉由將 9-〔4-（苯并喹啉-2-基）苯基〕-9H-咔唑（簡稱：CzBOx）和〔2-苯基吡啶-N,C^{2'}〕銦（III）乙醯丙酮鹽（簡稱：Ir（ppy）₂（acac））共蒸鍍，來以 40nm 的厚度形成第三層 1513。在此，調節蒸鍍速率，以便使 CzBOx 和 Ir（ppy）₂（acac）的質量比為 1：0.06（=CzBOx：Ir（ppy）₂（acac））。另外，在形成發光元件 2 的情況下，藉由將 9-〔4'-（苯并喹啉-2-基）聯苯-4-基〕-9H-咔唑（簡稱：CzPBOx）和〔2-苯基吡啶-N,C^{2'}〕銦（III）乙醯丙酮鹽（簡稱：Ir（ppy）₂（acac））共蒸鍍，來以 40nm 的厚度形成第三層 1513。在此，調節蒸鍍速率，以便使 CzPBOx 和 Ir（ppy）₂（acac）的質量比為 1：0.06（=CzPBOx：Ir（ppy）₂（acac））。

再者，藉由使用電阻加熱的蒸鍍法在第三層 1513 上形成厚度 10nm 的三（8-羥基喹啉）鋁（III）（簡稱：Alq），在其上形成厚度 20nm 的紅啡啉（簡稱：BPhen），來形成作為電子傳輸層的第四層 1514。

在第四層 1514 上，藉由以 1nm 的厚度形成氟化鋰（LiF），來形成作為電子注入層的第五層 1515。

最後，藉由使用電阻加熱的蒸鍍法，以 200nm 的厚度形成鋁膜，來形成第二電極 1504，而製造發光元件 1 及發光元件 2。

在氮氣氣氛的手套箱中，以不使發光元件暴露於大氣的方式對藉由上述方法獲得的發光元件 1 及發光元件 2 進行密封，然後對這些發光元件的工作特性進行測定。注意，在室溫（保持為 25℃ 的氣氛）中進行測定。

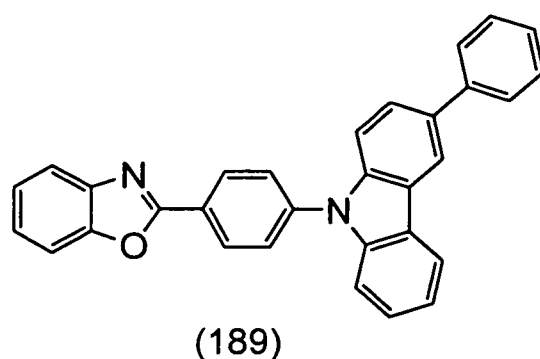
圖 15 示出發光元件 1 及發光元件 2 的電流密度-亮度特性，圖 16 示出電壓-亮度特性，圖 17 示出亮度-電流效率特性。在圖 15 中縱軸表示亮度（ cd/m^2 ），橫軸表示電流密度（ mA/cm^2 ），在圖 16 中縱軸表示亮度（ cd/m^2 ），橫軸表示電壓（V），在圖 17 中縱軸表示電流效率（ cd/A ），橫軸表示亮度（ cd/m^2 ）。

注意，在圖 17 中，發光元件 1 呈現 64 cd/A 的最大電流效率，發光元件 2 呈現 61 cd/A 的最大電流效率。因此可知，使用本發明的苯并噁唑衍生物的發光元件是非常高效率的元件。

另外，圖 18 示出發光元件 1 及發光元件 2 的發光光譜。注意，如圖 18 所示，不管採用發光元件 1 還是採用發光元件 2，都觀察到來自於作為客體材料的 $\text{Ir}(\text{ppy})_2(\text{acac})$ 的發光波長，而未觀察到來自於作為主體材料的本發明的苯并噁唑衍生物（ CzBOx 或 CzPBOx ）的發光波長。因此可知本發明的苯并噁唑衍生物在發光元件的發光層中用作雙極性的主體材料。

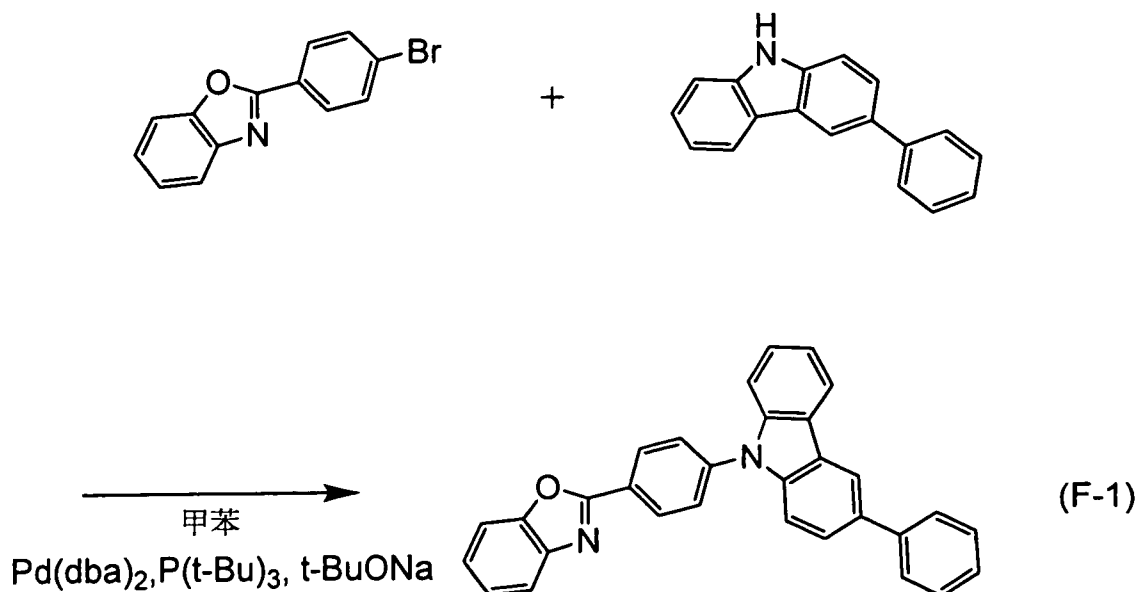
實施例 4

在本實施例 4 中，具體地說明以結構式 (189) 表示的本發明的苯并喹啉衍生物的 9-[4-(苯并喹啉-2-基)苯基]-3-苯基-9H-咔唑 (簡稱：CzBOxII) 的合成方法。



9-[4-(苯并喹啉-2-基)苯基]-3-苯基-9H-咔唑的合成

在 (F-1) 中表示 9-[4-(苯并喹啉-2-基)苯基]-3-苯基-9H-咔唑的合成圖解。



將 2-(4-溴苯基)苯并喹啉 1.0 g (3.7 mmol)、3-苯基-9H-咔唑 0.89 g (3.7 mmol)、叔丁醇鈉 0.77 g (8.0 mmol) 放在 100 mL 三頸燒瓶中，將該燒瓶內進行氮氣置換。對

該混合物添加甲苯 30mL、三（叔丁基）磷的 10%己烷溶液 0.10mL，並且利用吸氣器（aspirator）對該燒瓶內進行減壓，以對該混合物進行脫氣之後，對該燒瓶內進行氮氣置換。對該混合物添加雙（二亞苺基丙酮）鈀（0）0.058g（0.10mmol），在氮氣氣流下且在 80℃中攪拌 15 小時。在攪拌之後，對該混合物添加甲苯，將該懸浮液依次使用飽和碳酸鈉水溶液和飽和食鹽水進行洗滌。在洗滌之後，對有機層添加硫酸鎂進行乾燥。在乾燥之後，對該混合物進行抽濾，獲得濾液。

使用矽藻土 545（岸田化學；Kishida Chemical Co.,Ltd.製造，目錄號碼 020-14815）對獲得了的濾液進行抽濾，獲得濾液。藉由利用矽膠管柱層析法對濃縮獲得了的濾液來獲得的化合物進行純化。藉由將甲苯用作展開溶劑進行該管柱層析法。將所得流分（fraction）濃縮得到固體。使用氯仿和甲醇的混合溶劑使該固體再結晶，以 68%的產率獲得收量 1.1g 的粉末狀的白色固體。

另外，藉由梯度昇華方法進行獲得了的 1.1g 的白色固體的昇華純化。在如下條件下進行昇華純化：在 3.0Pa 的減壓下，將氬的流量設定為 5mL/min 並在 250℃中進行 15 小時。收量為 0.66g，而產率為 60%。

藉由核磁共振（NMR）法測定藉由上述合成方法獲得的化合物。下面示出測定資料。¹H NMR（CDCl₃，300MHz）：δ = 7.30-7.86（m，16H），8.20（d，J=8.3Hz，1H），8.36（sd，J=2.0Hz，1H），8.51（d，J=8.8Hz，

2H)。

另外，在圖 19A 和 19B 中表示 ^1H NMR 圖。注意，圖 19B 是將圖 19A 中的 7.0ppm 至 9.0ppm 的範圍放大表示的圖。根據測定結果，可知獲得以上述結構式 (189) 表示的 9-[4-(苯并呋唑-2-基)苯基]-3-苯基-9H-呋唑 (簡稱：CzBOxII)。

另外，圖 20A 中表示 CzBOxII 的甲苯溶液的吸收光譜，在圖 20B 中表示 CzBOxII 的薄膜的吸收光譜。測定中使用紫外可見分光光度計 (日本分光株式會社製、V-550 型)。藉由將 CzBOxII 的甲苯溶液放在石英比色皿中測定，並減去了石英和甲苯的吸收光譜，來進行甲苯溶液中的 CzBOxII 的吸收光譜的測定。另外，藉由將 CzBOxII 蒸鍍在石英基板上而製造樣品，並減去了石英的吸收光譜，來進行 CzBOxII 的薄膜的吸收光譜的測定。

在圖 20A 及圖 20B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示吸收強度 (任意單位)。在甲苯溶液的情況下，在 348nm 附近觀察到吸收峰值，在薄膜的情況下，在 355nm 附近觀察到吸收峰值。另外，在圖 20A 中表示 CzBOxII 的甲苯溶液 (激發波長為 348nm) 的發光光譜。另外，在圖 20B 中表示 CzBOxII 的薄膜 (激發波長為 365nm) 的發光光譜。在圖 20A 及圖 20B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示發光強度 (任意單位)。在甲苯溶液的情況下，最大發光波長為 399nm (激發波長為 348nm)，在薄膜的情況下，最大發光波長為 430nm (激發波長為 365nm)。

此外，藉由利用大氣中的光電子分光法（日本理研計器株式會社製造的 AC-2）測定在 CzBOxII 處於薄膜狀態時的電離電位的結果為 5.76eV 。其結果是，可知 HOMO 能級為 -5.76eV 。再者，藉由使用在 CzBOxII 的薄膜的吸收光譜的資料，並從假定直接躍遷的 Tauc 曲線找到吸收端，且以該吸收端為光學能隙進行預測，結果該能隙為 3.19eV 。根據所獲得的能隙值和 HOMO 能級來算出的 LUMO 能級為 -2.57eV 。由此可知 CzBOxII 是具有較大的能隙的物質。

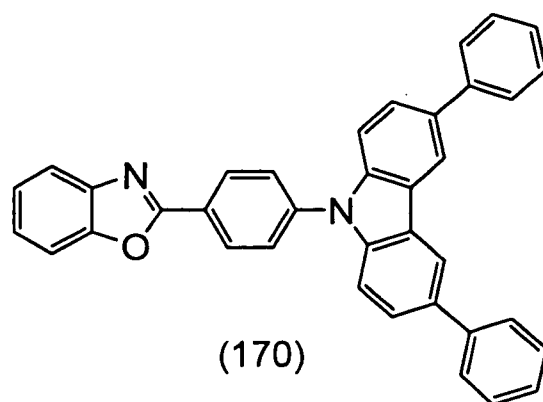
另外，藉由使用與實施例 1 同樣的方法測定 CzBOxII 的氧化還原反應特性。具體而言，以使相對於參考電極的工作電極的電位從 0.055V 變化為 1.05V 之後、從 1.05V 變化為 0.055V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，對 CzBOxII 的還原反應特性進行考察。以使相對於參考電極的工作電極的電位從 -1.09V 變化為 -2.45V 之後、從 -2.45V 變化為 -1.09V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，將 CV 測定的掃描速度設定為 0.1V/s 。

根據測定的結果，即使反復進行了 100 個週期測定之後，也在氧化還原反應中幾乎沒有發現 CV 曲線的峰位置和峰強度的變化。由此可知，本發明的苯并呋啞衍生物的 CzBOxII 對於反復進行的氧化還原反應是極為穩定的。

實施例 5

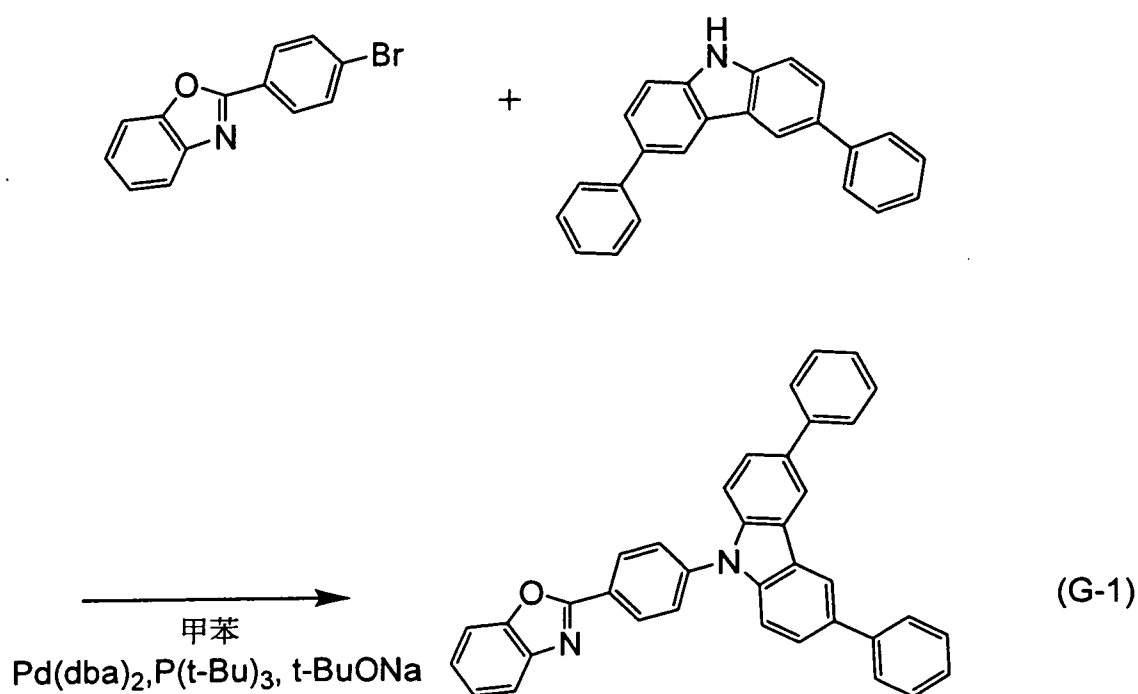
在本實施例 5 中，具體地說明以結構式 (170) 表示

的本發明的苯并噁唑衍生物的 9-〔4-（苯并噁唑-2-基）苯基〕-3,6-二苯基-9H-咔唑（簡稱：CzBOxIII）的合成方法。



9-〔4-（苯并噁唑-2-基）苯基〕-3,6-二苯基-9H-咔唑的合成

在（G-1）中表示 9-〔4-（苯并噁唑-2-基）苯基〕-3,6-二苯基-9H-咔唑的合成圖解。



將 2-（4-溴苯基）苯并噁唑 1.0g（3.7mmol）、3,6-二苯基-9H-咔唑 1.2g（3.7mmol）、叔丁醇鈉 0.77g（

8.0mmol) 放在 100mL 三頸燒瓶中，對該燒瓶內進行氮氣置換。對該混合物添加甲苯 15mL、三(叔丁基)磷的 10%己烷溶液 0.10mL，並且利用吸氣器對該燒瓶內進行減壓，以對該混合物進行脫氣之後，對該燒瓶內進行氮氣置換。對該混合物添加雙(二亞苄基丙酮)鈀(0) 0.030g (0.052mmol)，在氮氣氣流下且在 80℃ 中攪拌 5 小時。在攪拌之後，對該混合物添加甲苯，對該懸浮液使用矽藻土 545 (岸田化學；Kishida Chemical Co.,Ltd.製造，目錄號碼 020-14815) 進行抽濾，獲得濾液。

將獲得了的濾液依次使用飽和碳酸氫鈉水溶液和飽、食鹽水進行洗滌。在洗滌之後，對有機層添加硫酸鎂進行乾燥。在乾燥之後，對該混合物進行抽濾，獲得濾液。藉由利用矽膠管柱層析法對濃縮獲得了的濾液來獲得的化合物進行純化。藉由將甲苯用作展開溶劑進行該管柱層析法。將所得流分 (fraction) 濃縮得到固體。使用二氯甲烷和乙醇的混合溶劑使該固體再結晶，以 95% 的產率獲得收量 1.8g 的粉末狀的白色固體。

另外，藉由梯度昇華方法進行獲得了的 1.8g 的白色固體的昇華純化。在如下條件下進行昇華純化：在 4.0Pa 的減壓下，將氫的流量設定為 5mL/min 並在 280℃ 中進行 21 小時。收量為 1.5g，而產率為 83%。

藉由核磁共振 (NMR) 法測定藉由上述合成方法獲得的化合物。下面示出測定資料。¹H NMR (CDCl₃, 300MHz) : δ = 7.32-7.86 (m, 20H), 8.41 (sd,

$J=2.0\text{ Hz}$ ， 2 H ）， 8.53 （ d ， $J=8.8\text{ Hz}$ ， 2 H ）。

另外，在圖 21A 和 21B 中表示 ^1H NMR 圖。注意，圖 21B 是將圖 21A 中的 7.0 ppm 至 9.0 ppm 的範圍放大表示的圖。根據測定結果，可知獲得以上述結構式（170）表示的 9-〔4-（苯并呋啞-2-基）苯基〕-3,6-二苯基-9H-呋啞（簡稱：CzBOxIII）。

另外，圖 22A 中表示 CzBOxIII 的甲苯溶液的吸收光譜，在圖 22B 中表示 CzBOxIII 的薄膜的吸收光譜。測定中使用紫外可見分光光度計（日本分光株式會社製、V-550 型）。藉由將 CzBOxIII 的甲苯溶液放在石英比色皿中測定，並減去了石英和甲苯的吸收光譜，來進行甲苯溶液中的 CzBOxIII 的吸收光譜的測定。另外，藉由將 CzBOxIII 蒸鍍在石英基板上而製造樣品，並減去了石英的吸收光譜，來進行 CzBOxIII 的薄膜的吸收光譜的測定。

在圖 22A 及圖 22B 中，橫軸表示波長（nm），縱軸表示吸收強度（任意單位）。在甲苯溶液的情況下，在 356 nm 附近觀察到吸收峰值，在薄膜的情況下，在 362 nm 附近觀察到吸收峰值。另外，在圖 22A 中表示 CzBOxIII 的甲苯溶液（激發波長為 356 nm ）的發光光譜。另外，在圖 22B 中表示 CzBOxIII 的薄膜（激發波長為 365 nm ）的發光光譜。在圖 22A 及圖 22B 中，橫軸表示波長（nm），縱軸表示發光強度（任意單位）。在甲苯溶液的情況下，最大發光波長為 403 nm （激發波長為 356 nm ），在薄膜的情況下，最大發光波長為 442 nm （激發波長為 365 nm ）。

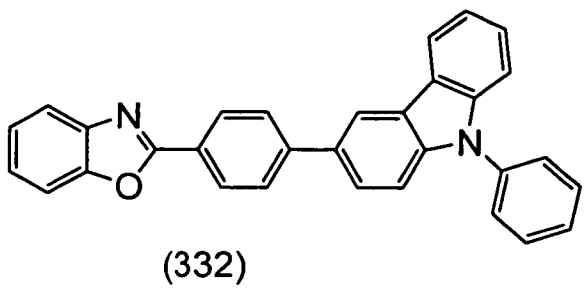
此外，藉由利用大氣中的光電子分光法（日本理研計器株式會社製造的 AC-2）測定在 CzBOxIII 處於薄膜狀態時的電離電位的結果為 5.88 eV。其結果是，可知 HOMO 能級為 -5.88 eV。再者，藉由使用在 CzBOxIII 的薄膜的吸收光譜的資料，並從假定直接躍遷的 Tauc 曲線找到吸收端，且以該吸收端為光學能隙進行預測，結果該能隙為 3.15 eV。根據所獲得的能隙值和 HOMO 能級來算出的 LUMO 能級為 -2.73 eV。由此可知 CzBOxIII 是具有較大的能隙的物質。

另外，藉由使用與實施例 1 同樣的方法測定 CzBOxIII 的氧化還原反應特性。具體而言，以使相對於參考電極的工作電極的電位從 0.155 V 變化為 1.05 V 之後、從 1.05 V 變化為 0.155 V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，對 CzBOxIII 的還原反應特性進行考察。以使相對於參考電極的工作電極的電位從 -1.04 V 變化為 -2.45 V 之後、從 -2.45 V 變化為 -1.04 V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，將 CV 測定的掃描速度設定為 0.1 V/s。

根據測定的結果，即使反復進行了 100 個週期測定之後，也在氧化還原反應中幾乎沒有發現 CV 曲線的峰位置和峰強度的變化。由此可知，本發明的苯并噁唑衍生物的 CzBOxIII 對於反復進行的氧化還原反應是極為穩定的。

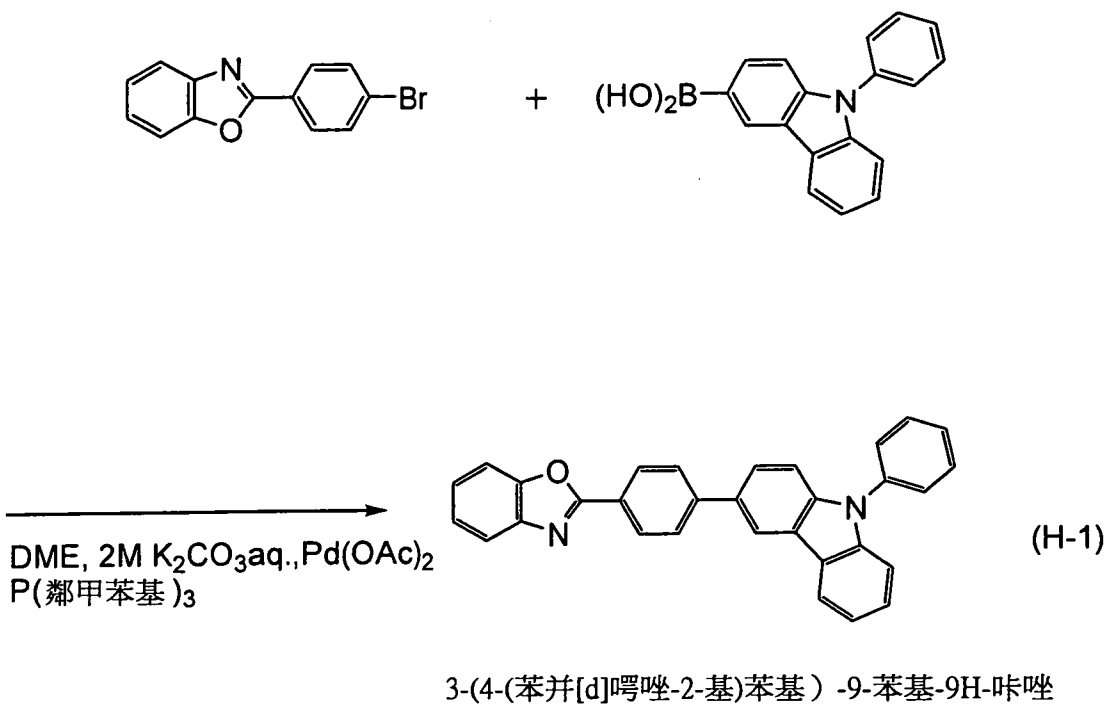
實施例 6

在本實施例 6 中，具體地說明以結構式 (332) 表示的本發明的苯并噁唑衍生物的 3-(4-(苯并噁唑-2-基)苯基)-9-苯基-9H-咔唑 (簡稱：PCBO_x) 的合成方法。



3-(4-(苯并噁唑-2-基)苯基)-9-苯基-9H-咔唑的合成

在 (H-1) 中表示 3-(4-(苯并噁唑-2-基)苯基)-9-苯基-9H-咔唑的合成圖解。



將 2-(4-溴苯基)苯并噁唑 0.95 g (3.5 mmol)、9-苯基-9H-咔唑-3-硼酸 1.0 g (3.5 mmol)、三(鄰甲苯基)膦 0.074 g (0.24 mmol) 放在 100 mL 三頸燒瓶中。在對該混合物添加 1,2-二甲氧基乙烷 (簡稱：DME) 15 mL 和 2 M 的碳

酸鉀水溶液 5mL，並且對該混合物進行減壓脫氣之後，對該燒瓶內進行氮氣置換。對該混合物添加醋酸鈮（II）7.8mg（0.035mmol），並且在氮氣氣流下，在 100℃ 中攪拌該混合物 5 小時。在攪拌之後，對該混合物添加甲苯，對該懸浮液依次使用飽和碳酸鈉水溶液、飽和食鹽水的順序進行洗滌。在洗滌之後，對有機層添加硫酸鎂進行乾燥。在乾燥之後，對該混合物進行抽濾，獲得濾液。

使用矽藻土 545（Kishida Chemical Co.,Ltd.製造，020-14815）對獲得了的濾液進行抽濾，獲得濾液，濃縮該濾液得到化合物。藉由利用矽膠管柱層析法對該化合物進行純化。藉由將甲苯用作展開溶劑進行該管柱層析法。將所得流分（fraction）濃縮得到固體。使用氯仿和甲醇的混合溶劑使該固體再結晶，以 65%的產率獲得收量 1.0g 的粉末狀的淡黃色固體。

另外，藉由梯度昇華方法進行獲得了的 1.0g 的固體的昇華純化。在如下條件下進行昇華純化：在 3.0Pa 的減壓下，將氬的流量設定為 5mL/min 並在 250℃ 中進行 16 小時。收量為 0.75g，而產率為 75%。

藉由核磁共振（NMR）法測定藉由上述合成方法獲得的化合物。下面示出測定資料。¹H NMR（CDCl₃，300MHz）：δ=7.29-7.74（m，13H），7.78-7.82（m，1H），7.89（d，J=9.3Hz，2H），8.22（d，J=6.8Hz，1H），8.36（d，J=8.3Hz，2H），8.44（sd，J=1.5Hz，1H）。

另外，在圖 23A 和 23B 中表示 ¹H NMR 圖。注意，圖

23B 是將圖 23A 中的 7.0ppm 至 9.0ppm 的範圍放大表示的圖。根據測定結果，可知獲得以上述結構式 (332) 表示的 3-(4-(苯并呋唑-2-基)苯基)-9-苯基-9H-呋唑 (簡稱：PCBOx)。

另外，圖 24A 中表示 PCBOx 的甲苯溶液的吸收光譜，在圖 24B 中表示 PCBOx 的薄膜的吸收光譜。測定中使用紫外可見分光光度計 (日本分光株式會社製、V-550 型)。藉由將 PCBOx 的甲苯溶液放在石英比色皿中測定，並減去了石英和甲苯的吸收光譜，來進行甲苯溶液中的 PCBOx 的吸收光譜的測定。另外，藉由將 PCBOx 蒸鍍在石英基板上而製造樣品，並減去了石英的吸收光譜，來進行 PCBOx 的薄膜的吸收光譜的測定。

在圖 24A 及圖 24B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示吸收強度 (任意單位)。在甲苯溶液的情況下，在 338nm 附近觀察到吸收峰值，在薄膜的情況下，在 344nm 附近觀察到吸收峰值。另外，在圖 24A 中表示 PCBOx 的甲苯溶液 (激發波長為 338nm) 的發光光譜。另外，在圖 24B 中表示 PCBOx 的薄膜 (激發波長為 334nm) 的發光光譜。在圖 24A 及圖 24B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示發光強度 (任意單位)。在甲苯溶液的情況下，最大發光波長為 392nm、411nm (激發波長為 338nm)，在薄膜的情況下，最大發光波長為 444nm (激發波長為 334nm)。

此外，藉由利用大氣中的光電子分光法 (日本理研計

器株式會社製造的 AC-2) 測定在 PCBOx 處於薄膜狀態時的電離電位的結果為 5.58eV 。其結果是，可知 HOMO 能級為 -5.58eV 。再者，藉由使用在 PCBOx 的薄膜的吸收光譜的資料，並從假定直接躍遷的 Tauc 曲線找到吸收端，且以該吸收端為光學能隙進行預測，結果該能隙為 3.20eV 。根據所獲得的能隙值和 HOMO 能級來算出的 LUMO 能級為 -2.38eV 。由此可知 PCBOx 是具有較大的能隙的物質。

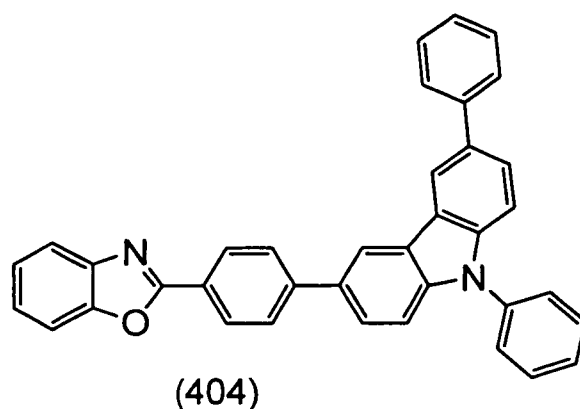
另外，藉由使用與實施例 1 同樣的方法測定 PCBOx 的氧化還原反應特性。具體而言，以使相對於參考電極的工作電極的電位從 0.064V 變化為 1.07V 之後、從 1.07V 變化為 0.064V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，對 PCBOx 的還原反應特性進行考察。以使相對於參考電極的工作電極的電位從 -1.41V 變化為 -2.45V 之後、從 -2.45V 變化為 -1.41V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，將 CV 測定的掃描速度設定為 0.1V/s 。

根據測定的結果，即使反復進行了 100 個週期測定之後，也在氧化還原反應中幾乎沒有發現 CV 曲線的峰位置和峰強度的變化。由此可知，本發明的苯并呋唑衍生物的 PCBOx 對於反復進行的氧化還原反應是極為穩定的。

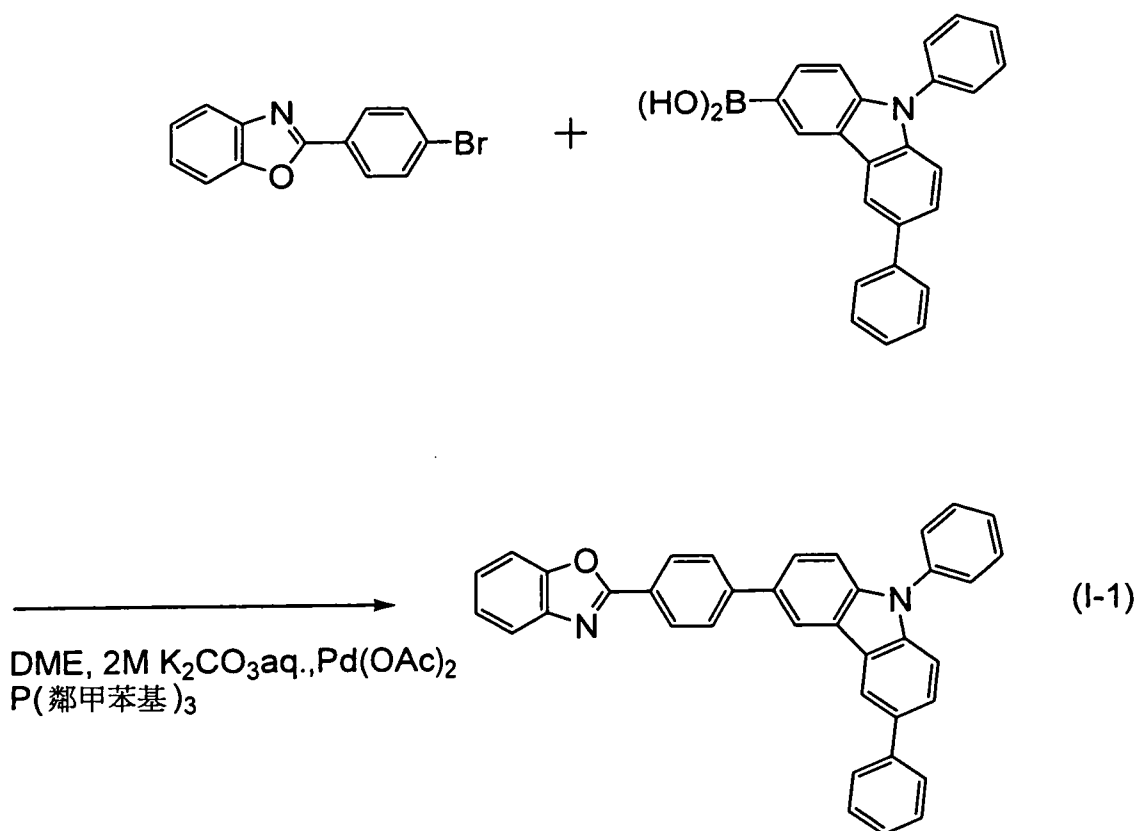
實施例 7

在本實施例 7 中，具體地說明以結構式 (404) 表示的本發明的苯并呋唑衍生物的 3-(4-(苯并呋唑-2-基))

苯基)-6,9-二苯基-9H-咔唑 (簡稱: PCBOxII) 的合成方法。



3-(4-(苯并噁唑-2-基)苯基)-6,9-二苯基-9H-咔唑的合成在 (I-1) 中表示 3-(4-(苯并噁唑-2-基)苯基)-6,9-二苯基-9H-咔唑的合成圖解。



將 2-(4-溴苯基)苯并噁唑 0.75 g (2.8 mmol)、6,9-二苯基-9H-咔唑-3-硼酸 1.0 g (2.8 mmol)、三(鄰甲苯基)膦 0.060 g (0.20 mmol) 放在 100 mL 三頸燒瓶中。在對

該混合物添加 1,2-二乙氧基乙烷（簡稱：DME）15mL 和 2M 的碳酸鉀水溶液 5mL，並且對該混合物進行減壓脫氣之後，對該燒瓶內進行氮氣置換。對該混合物添加醋酸鈮（II）6.2mg（0.028mmol），並且在 90℃ 中對該混合物進行加熱攪拌 3 小時。在攪拌之後，對該混合物添加氯仿，將該懸浮液依次使用飽和碳酸鈉水溶液、飽和食鹽水進行洗滌。在洗滌之後，對有機層添加硫酸鎂乾燥。在乾燥之後，對該混合物進行抽濾，獲得濾液。使用矽藻土 545（Kishida Chemical Co.,Ltd.製造，020-14815）對獲得了的濾液進行抽濾，獲得濾液。

濃縮所得濾液得出化合物，藉由利用矽膠管柱層析法對該化合物進行純化。藉由將甲苯用作展開溶劑進行該管柱層析法。將所得流分（fraction）濃縮得到固體。使用氯仿和甲醇的混合溶劑使該固體再結晶，以 77% 的產率獲得收量 1.1g 的粉末狀的白色固體。

另外，藉由梯度昇華方法進行獲得了的 1.1g 的白色固體的昇華純化。在如下條件下進行昇華純化：在 2.6Pa 的減壓下，將氬的流量設定為 5mL/min 並在 270℃ 中進行 14 小時。以 91% 的產率獲得收量 1.0g。

藉由核磁共振（NMR）法測定藉由上述合成方法獲得的化合物。下面示出測定資料。¹H NMR（CDCl₃，300MHz）：δ = 7.32-7.82（m，18H），7.89（d，J=8.3Hz，2H），8.36（d，J=8.8Hz，2H），8.43（sd，J=1.5Hz，1H），8.48（sd，J=1.5Hz，1H）。

另外，在圖 25A 和 25B 中表示 ^1H NMR 圖。注意，圖 25B 是將圖 25A 中的 7.0ppm 至 9.0ppm 的範圍放大表示的圖。根據測定結果，可知獲得以上述結構式 (404) 表示的 3-(4-(苯并呋唑-2-基)苯基)-6,9-二苯基-9H-呋唑 (簡稱：PCBOxII)。

另外，圖 26A 中表示 PCBOxII 的甲苯溶液的吸收光譜，在圖 26B 中表示 PCBOxII 的薄膜的吸收光譜。測定中使用紫外可見分光光度計 (日本分光株式會社製、V-550 型)。藉由將 PCBOxII 的甲苯溶液放在石英比色皿中測定，並減去了石英和甲苯的吸收光譜，來進行甲苯溶液中的 PCBOxII 的吸收光譜的測定。另外，藉由將 PCBOxII 蒸鍍在石英基板上而製造樣品，並減去了石英的吸收光譜，來進行 PCBOxII 的薄膜的吸收光譜的測定。

在圖 26A 及圖 26B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示吸收強度 (任意單位)。在甲苯溶液的情況下，在 341nm 附近觀察到吸收峰值，在薄膜的情況下，在 352nm 附近觀察到吸收峰值。另外，在圖 26A 中表示 PCBOxII 的甲苯溶液 (激發波長為 341nm) 的發光光譜。另外，在圖 26B 中表示 PCBOxII 的薄膜 (激發波長為 369nm) 的發光光譜。在圖 26A 及圖 26B 中，橫軸表示波長 (nm)，縱軸表示發光強度 (任意單位)。在甲苯溶液的情況下，最大發光波長為 393nm、415nm (激發波長為 341nm)，在薄膜的情況下，最大發光波長為 444nm (激發波長為 369nm)。

此外，藉由利用大氣中的光電子分光法（日本理研計器株式會社製造的 AC-2）測定在 PCBOxII 處於薄膜狀態時的電離電位的結果為 5.64eV 。結果，可知 HOMO 能級為 -5.64eV 。再者，藉由使用在 PCBOxII 的薄膜的吸收光譜的資料，並從假定直接躍遷的 Tauc 曲線找到吸收端，且以該吸收端為光學能隙進行預測，結果該能隙為 3.12eV 。根據所獲得的能隙值和 HOMO 能級來算出的 LUMO 能級為 -2.52eV 。由此可知 PCBOxII 是具有較大的能隙的物質。

另外，藉由使用與實施例 1 同樣的方法測定 PCBOxII 的氧化還原反應特性。具體而言，以使相對於參考電極的工作電極的電位從 0.036V 變化為 1.02V 之後、從 1.02V 變化為 0.036V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，對 PCBOxII 的還原反應特性進行考察。以使相對於參考電極的工作電極的電位從 -1.36V 變化為 -2.45V 之後、從 -2.45V 變化為 -1.36V 的掃描為一個週期，測定 100 個週期。另外，將 CV 測定的掃描速度設定為 0.1V/s 。

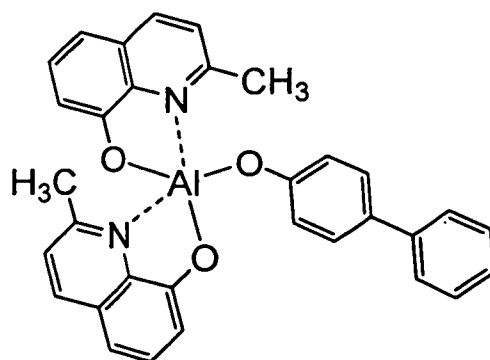
根據測定的結果，即使反復進行了 100 個週期測定之後，也在氧化還原反應中幾乎沒有發現 CV 曲線的峰位置和峰強度的變化。由此可知，本發明的苯并噁唑衍生物的 PCBOxII 對於反復進行的氧化還原反應是極為穩定的。

實施例 8

在本實施例中表示使用將實施方式 1 所記載的苯并噁

唑衍生物用作發光層的主體材料的發光元件的製造方法及元件特性的測定結果。具體而言，示出發光元件 3 和發光元件 4，該發光元件 3 是使用在實施例 4 中說明的 9-〔4-（苯并呋唑-2-基）苯基〕-3-苯基-9H-呋唑（簡稱：CzBOxII）形成的，並且該發光元件 4 是使用在實施例 5 中說明的 9-〔4-（苯并呋唑-2-基）苯基〕-3,6-二苯基-9H-呋唑（簡稱：CzBOxIII）形成的。

注意，本實施例 8 中的發光元件的元件結構是圖 10 所示的結構，它是將上述的本發明的一個方式的苯并呋唑衍生物用於發光層 1513 而形成的。下面示出本實施例 8 所使用的有機化合物之中在實施例 3 中沒示出的結構式。



BAiq

首先，藉由濺射法在作為玻璃基板的基板 1501 上形成包含氧化矽的氧化銦-氧化錫，從而形成第一電極 1502。注意，第一電極 1502 的厚度為 110nm，並其電極面積為 2mm×2mm。

接著，在第一電極 1502 上形成層疊有多個層的 EL 層 1503。在本實施例中，EL 層 1503 具有作為電洞注入層的第一層 1511、作為電洞傳輸層的第二層 1512、作為發光

層的第三層 1513、作為電子傳輸層的第四層 1514、作為電子注入層的第五層 1515 的順序層疊的結構。

接著，將形成有第一電極 1502 的基板 1501 固定在設置在真空蒸鍍裝置中的基板支架上，以使形成有第一電極 1502 的基板表面向下，並且將成膜室減壓到大約 10^{-4} Pa，然後藉由將 4,4'-雙〔N-（1-萘基）-N-苯基胺基〕聯苯（簡稱：NPB）和氧化鋁（VI）共蒸鍍在第一電極 1502 上，來形成作為電洞注入層的第一層 1511。將該第一層 1511 的厚度設定為 40nm，並且調節蒸鍍速率，以便 NPB 和氧化鋁（VI）的質量比為 4：1（=NPB：氧化鋁）。注意，共蒸鍍法是指在一個處理室內從多個蒸發源同時進行蒸鍍的方法。

接著，藉由使用電阻加熱的蒸鍍法在第一層 1511 上以 20nm 的厚度形成電洞傳輸材料，來形成作為電洞傳輸層的第二層 1512。注意，作為第二層 1512 使用 4-（9H-咔唑-9-基）-4'-苯基三苯基胺（簡稱：YGA1BP）。

接著，藉由使用電阻加熱的蒸鍍法在第二層 1512 上形成作為發光層的第三層 1513。注意，在形成發光元件 3 的情況下，藉由將 9-〔4-（苯并喹唑-2-基）苯基〕-3-苯基-9H-咔唑（簡稱：CzBOxII）和〔2-苯基吡啶-N,C^{2'}〕銦（III）乙醯丙酮鹽（簡稱：Ir（ppy）₂（acac））共蒸鍍，來以 40nm 的厚度形成第三層 1513。在此，調節蒸鍍速率，以便 CzBOxII 和 Ir（ppy）₂（acac）的質量比為 1：0.06（=CzBOxII：Ir（ppy）₂（acac））。另外，在形成

發光元件 4 的情況下，藉由將 9-〔4-（苯并喹啉-2-基）苯基〕-3,6-二苯基-9H-咔唑（簡稱：CzBOxIII）和〔2-苯基吡啶-N,C^{2'}〕銦（III）乙醯丙酮鹽（簡稱：Ir（ppy）₂（acac））共蒸鍍，來以 40nm 的厚度形成第三層 1513。在此，調節蒸鍍速率，以便 CzPBOx 和 Ir（ppy）₂（acac）的質量比為 1：0.06（=CzBOxIII：Ir（ppy）₂（acac））。

再者，藉由使用電阻加熱的蒸鍍法在第三層 1513 上形成以厚度 10nm 的雙（2-甲基-8-羥基喹啉）（4-苯基苯酚）鋁（簡稱：BALq），在其上形成以厚度 20nm 的紅啡啉（簡稱：BPhen），來形成作為電子傳輸層的第四層 1514。

在第四層 1514 上，藉由以 1nm 的厚度形成氟化鋰（LiF），來形成作為電子注入層的第五層 1515。

最後，藉由使用電阻加熱的蒸鍍法，以 200nm 的厚度形成鋁膜，來形成第二電極 1504，而製造發光元件 3 及發光元件 4。

在氮氣氣氛的手套箱中，以不使發光元件暴露於大氣的方式對藉由上述方法獲得的發光元件 3 及發光元件 4 進行密封，然後對這些發光元件的工作特性進行測定。注意，在室溫（保持為 25℃ 的氣氛）中進行測定。

圖 27 示出發光元件 3 及發光元件 4 的電流密度-亮度特性，圖 28 示出電壓-亮度特性，圖 29 示出亮度-電流效率特性。在圖 27 中縱軸表示亮度（cd/m²），橫軸表示電

流密度 (mA/cm^2)，在圖 28 中縱軸表示亮度 (cd/m^2)，橫軸表示電壓 (V)，在圖 29 中縱軸表示電流效率 (cd/A)，橫軸表示亮度 (cd/m^2)。

注意，在圖 29 中，發光元件 3 最大表示 $60\text{cd}/\text{A}$ 的電流效率，發光元件 4 最大表示 $69\text{cd}/\text{A}$ 的電流效率。因此可知，使用本發明的苯并噁唑衍生物的發光元件是非常高效的元件。

另外，圖 30 示出發光元件 3 及發光元件 4 的發光光譜。注意，如圖 30 所示，不管採用發光元件 3 還是採用發光元件 4，都觀察到來自於作為客體材料的 $\text{Ir}(\text{ppy})_2(\text{acac})$ 的發光波長，而未觀察到來自於作為主體材料的本發明的苯并噁唑衍生物 (CzBOxII 或 CzBOxIII) 的發光波長。因此可知本發明的苯并噁唑衍生物在發光元件的發光層中用作雙極性的主體材料。

實施例 9

在本實施例 9 中表示使用將實施方式 1 所記載的苯并噁唑衍生物用作發光層的主體材料的發光元件的製造方法及元件特性的測定結果。具體而言，示出使用在實施例 6 中說明的 3-(4-(苯并噁唑-2-基)苯基)-9-苯基-9H-咔唑 (簡稱： PCBOx) 形成的發光元件 3。

注意，本實施例 9 中的發光元件的元件結構是圖 10 所示的結構，它是將上述的本發明的一個方式的苯并噁唑衍生物用於發光層 1513 而形成的。本實施例 9 所使用的

有機化合物是與實施例 3 及實施例 8 所示的有機化合物同樣，因此省略結構式的列舉。

首先，藉由濺射法在作為玻璃基板的基板 1501 上形成包含氧化矽的氧化銦-氧化錫，從而形成第一電極 1502。注意，第一電極 1502 的厚度為 110nm，並其電極面積為 2mm×2mm。

接著，在第一電極 1502 上形成層疊有多個層的 EL 層 1503。在本實施例中，EL 層 1503 具有作為電洞注入層的第一層 1511、作為電洞傳輸層的第二層 1512、作為發光層的第三層 1513、作為電子傳輸層的第四層 1514、作為電子注入層的第五層 1515 的順序層疊的結構。

接著，將形成有第一電極 1502 的基板 1501 固定在設置在真空蒸鍍裝置中的基板支架上，以使形成有第一電極 1502 的基板表面向下，並且將成膜室減壓到大約 10^{-4} Pa，然後藉由將 4,4'-雙〔N-（1-萘基）-N-苯基胺基〕聯苯（簡稱：NPB）和氧化鉬（VI）共蒸鍍在第一電極 1502 上，來形成作為電洞注入層的第一層 1511。將該第一層 1511 的厚度設定為 40nm，並且調節蒸鍍速率，以便 NPB 和氧化鉬（VI）的質量比為 4：1（=NPB：氧化鉬）。注意，共蒸鍍法是指在一個處理室內從多個蒸發源同時進行蒸鍍的方法。

接著，藉由使用電阻加熱的蒸鍍法在第一層 1511 上以 20nm 的厚度形成電洞傳輸材料，來形成作為電洞傳輸層的第二層 1512。注意，作為第二層 1512 使用 4-（9H-

咪唑-9-基)-4'-苯基三苯基胺(簡稱:YGA1BP)。

接著,藉由使用電阻加熱的蒸鍍法在第二層1512上形成作為發光層的第三層1513。注意,在形成發光元件5的情況下,藉由將3-(4-(苯并咪唑-2-基)苯基)-9-苯基-9H-咪唑(簡稱:PCBOx)和[2-苯基吡啶-N,C^{2'}]銦(III)乙醯丙酮鹽(簡稱:Ir(ppy)₂(acac))共蒸鍍,來以40nm的厚度形成第三層1513。在此,調節蒸鍍速率,以便PCBOx和Ir(ppy)₂(acac)的質量比為1:0.06(=PCBOx:Ir(ppy)₂(acac))。

再者,藉由使用電阻加熱的蒸鍍法在第三層1513上形成以厚度10nm的雙(2-甲基-8-羥基喹啉)(4-苯基苯酚)鋁(簡稱:BAIq),在其上形成以厚度20nm的紅啡啉(簡稱:BPhen),來形成作為電子傳輸層的第四層1514。

在第四層1514上,藉由以1nm的厚度形成氟化鋰(LiF),來形成作為電子注入層的第五層1515。

最後,藉由使用電阻加熱的蒸鍍法,以200nm的厚度形成鋁膜,來形成第二電極1504,而製造發光元件5。

在氮氣氣氛的手套箱中,以不使發光元件暴露於大氣的方式對藉由上述方法獲得的發光元件5進行密封,然後對這些發光元件的工作特性進行測定。注意,在室溫(保持為25℃的氣氛)中進行測定。

圖31示出發光元件5的電流密度-亮度特性,圖32示出電壓-亮度特性,圖33示出亮度-電流效率特性。在圖

31 中縱軸表示亮度 (cd/m^2)，橫軸表示電流密度 (mA/cm^2)，在圖 32 中縱軸表示亮度 (cd/m^2)，橫軸表示電壓 (V)，在圖 33 中縱軸表示電流效率 (cd/A)，橫軸表示亮度 (cd/m^2)。

注意，在圖 33 中，發光元件 5 最大表示 49cd/A 的電流效率。因此可知，使用本發明的苯并噁唑衍生物的發光元件是非常高效的元件。

另外，圖 34 示出發光元件 5 的發光光譜。注意，如圖 34 所示，即使採用發光元件 5，也觀察到來自於作為客體材料的 $\text{Ir}(\text{ppy})_2(\text{acac})$ 的發光波長，而未觀察到來自於作為主體材料的本發明的苯并噁唑衍生物 (PCBOx) 的發光波長。因此可知本發明的苯并噁唑衍生物在發光元件的發光層中用作雙極性的主體材料。

本申請基於 2008 年 9 月 5 日在日本專利局提交的日本專利申請序列號 2008-228252 以及 2009 年 3 月 3 日在日本專利局提交的日本專利申請序列號 2009-049170，在此引用其全部內容作為參考。

【圖式簡單說明】

圖 1A 和 1B 是示出實施方式 2 中的發光元件的疊層結構的圖；

圖 2A 至 2C 是示出實施方式 2 中的發光元件的發光的方式的圖；

圖 3 是示出實施方式 3 中的發光元件的疊層結構的圖

；

圖 4A 和 4B 是示出實施方式 4 中的主動矩陣型的發光裝置的圖；

圖 5A 和 5B 是示出實施方式 4 中的被動矩陣型的發光裝置的圖；

圖 6A 至 6D 是示出實施方式 5 中的電子裝置的圖；

圖 7 是示出將本發明的發光裝置用作背光燈的液晶顯示裝置的圖；

圖 8 是示出使用本發明的發光裝置的桌燈的圖；

圖 9 是示出使用本發明的發光裝置的室內照明設備的圖；

圖 10 是示出實施例 3 中的發光元件的元件結構的圖；

圖 11A 和 11B 是示出 CzBO_x 的 NMR 圖的圖；

圖 12A 和 12B 是示出 CzBO_x 的吸收光譜和發光光譜的圖；

圖 13A 和 13B 是示出 CzPBO_x 的 NMR 圖的圖；

圖 14A 和 14B 是示出 CzPBO_x 的吸收光譜和發光光譜的圖；

圖 15 是示出發光元件 1 及發光元件 2 的電流密度-亮度特性的圖；

圖 16 是示出發光元件 1 及發光元件 2 的電壓-亮度特性的圖；

圖 17 是示出發光元件 1 及發光元件 2 的亮度-電流效

率特性的圖；

圖 18 是示出發光元件 1 及發光元件 2 的發光光譜的圖；

圖 19A 和 19B 是示出 $CzBO_xII$ 的 NMR 圖的圖；

圖 20A 和 20B 是示出 $CzBO_xII$ 的吸收光譜和發光光譜的圖；

圖 21A 和 21B 是示出 $CzBO_xIII$ 的 NMR 圖的圖；

圖 22A 和 22B 是示出 $CzBO_xIII$ 的吸收光譜和發光光譜的圖；

圖 23A 和 23B 是示出 $PCBO_x$ 的 NMR 圖的圖；

圖 24A 和 24B 是示出 $PCBO_x$ 的吸收光譜和發光光譜的圖；

圖 25A 和 25B 是示出 $PCBO_xII$ 的 NMR 圖的圖；

圖 26A 和 26B 是示出 $PCBO_xII$ 的吸收光譜和發光光譜的圖；

圖 27 是示出發光元件 3 及發光元件 4 的電流密度-亮度特性的圖；

圖 28 是示出發光元件 3 及發光元件 4 的電壓-亮度特性的圖；

圖 29 是示出發光元件 3 及發光元件 4 的亮度-電流效率特性的圖；

圖 30 是示出發光元件 3 及發光元件 4 的發光光譜的圖；

圖 31 是示出發光元件 5 的電流密度-亮度特性的圖；

圖 32 是示出發光元件 5 的電壓 - 亮度特性的圖；

圖 33 是示出發光元件 5 的亮度 - 電流效率特性的圖；

圖 34 是示出發光元件 5 的發光光譜的圖。

【主要元件符號說明】

101：基板

102：第一電極

103：EL 層

104：第二電極

111：第一層（電洞注入層）

112：第二層（電洞傳輸層）

113：第三層（發光層）

114：第四層（電子傳輸層）

115：第五層（電子注入層）

301：第一電極

302：第二電極

303：第一 EL 層

304：第二 EL 層

305：電荷產生層

401：驅動電路部（源極側驅動電路）

402：像素部

404：密封基板

405：密封材料

407：空間

- 408：引導佈線
- 409：FPC（撓性印刷電路）
- 410：元件基板
- 411：開關 TFT
- 412：電流控制 TFT
- 413：第一電極
- 414：絕緣物
- 416：EL層
- 417：第二電極
- 418：發光元件
- 423：n通道型 TFT
- 424：p通道型 TFT
- 501：基板
- 502：第一電極
- 503：第二電極
- 504：EL層
- 505：絕緣層
- 506：隔斷層
- 611：框體
- 612：支撐台
- 613：顯示部
- 614：揚聲器部
- 615：視頻輸入端子
- 621：主體

- 622：框體
- 623：顯示部
- 624：鍵盤
- 625：外部連接埠
- 626：定點裝置
- 631：主體
- 632：框體
- 633：顯示部
- 634：聲音輸入部
- 635：聲音輸出部
- 636：操作鍵
- 637：外部連接埠
- 638：天線
- 641：主體
- 642：顯示部
- 643：框體
- 644：外部連接埠
- 645：遙控接收部
- 646：影像接收部
- 647：電池
- 648：聲音輸入部
- 649：操作鍵
- 650：取景部
- 701：框體

702：液 晶 層

703：背 光 燈

704：框 體

705：驅 動 器 IC

706：端 子

801：框 體

802：光 源

901：照 明 設 備

902：電 視 裝 置

1501：基 板

1502：第 一 電 極

1503：EL 層

1504：第 二 電 極

1511：第 一 層

1512：第 二 層

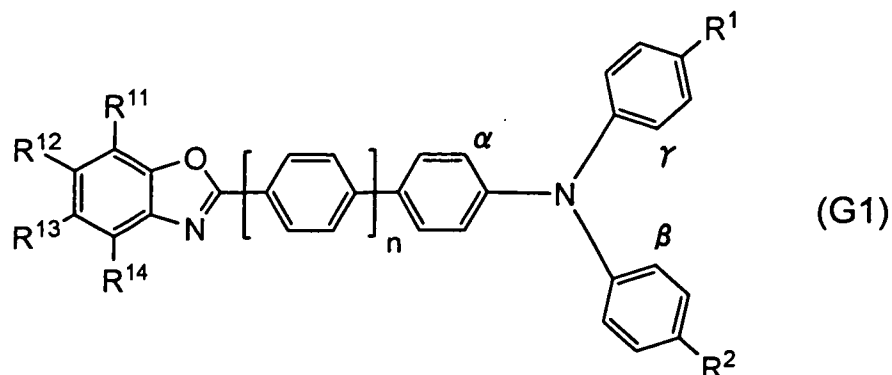
1513：第 三 層

1514：第 四 層

1515：第 五 層

七、申請專利範圍：

1. 一種以通式 (G1) 表示的苯并咪唑衍生物，



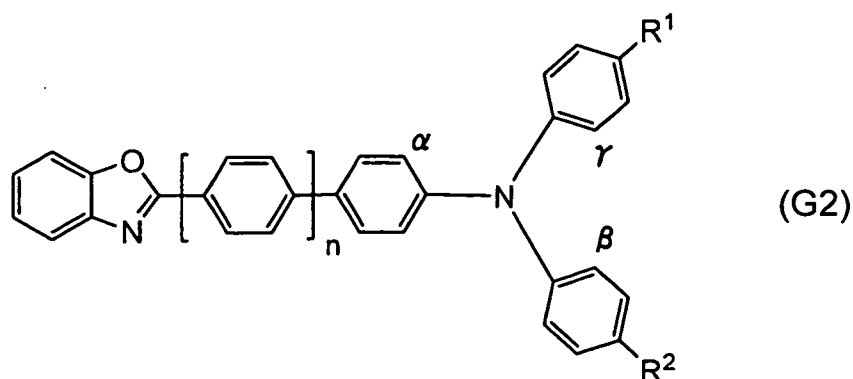
其中， R^1 和 R^2 分別表示氫原子、具有 1 至 4 的碳原子數的烷基、以及取代或未取代的具有 6 至 13 的碳原子數的芳基中的任一種，

其中， R^{11} 至 R^{14} 分別表示氫原子、鹵素、具有 1 至 4 的碳原子數的烷基、以及未取代的具有 6 至 10 的碳原子數的芳基中的任一種，

其中， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成咪唑骨架，

並且其中， n 為 1、2 或 3。

2. 一種以通式 (G2) 表示的苯并咪唑衍生物，



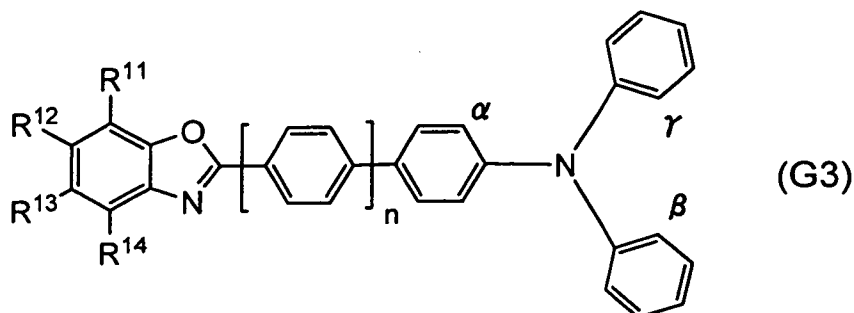
其中， R^1 和 R^2 分別表示氫原子、具有 1 至 4 的碳原子數的烷基、以及取代或未取代的具有 6 至 13 的碳原子

數的芳基中的任一種，

其中， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成咪唑骨架，

並且其中， n 為 1、2 或 3。

3. 一種以通式 (G3) 表示的苯并咪唑衍生物，



其中， R^{11} 至 R^{14} 分別表示氫原子、鹵素、具有 1 至 4 的碳原子數的烷基、以及未取代的具有 6 至 10 的碳原子數的芳基中的任一種，

其中， α 、 β 、 γ 中的任二者之間形成一鍵而形成咪唑骨架，

並且其中， n 為 1、2 或 3。

4. 如申請專利範圍第 1 或 2 項的苯并咪唑衍生物，其中 R^1 和 R^2 中的任一個具有螺環結構。

5. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項的苯并咪唑衍生物，其中 n 是 1 或 2。

6. 如申請專利範圍第 2 項的苯并咪唑衍生物，

其中，該鍵形成在 β 和 γ 之間，

R^1 和 R^2 分別為氫原子，

並且， n 是 1。

7. 一種包括在一對電極之間的 EL 層的發光元件，其

中該 EL 層包括如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項的苯并喹啉衍生物。

8. 一種包括如申請專利範圍第 7 項的發光元件的電子裝置。

9. 如申請專利範圍第 8 項的電子裝置，其中該電子裝置是選自影像拍攝裝置、顯示器、導航系統、聲音再現裝置、電腦、遊戲機、可攜式資訊終端、圖像再現裝置、以及照明設備中的任一種。

圖 1A

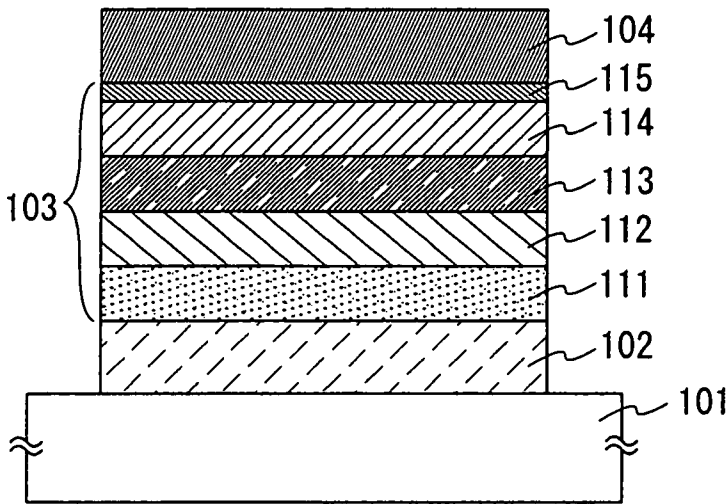


圖 1B

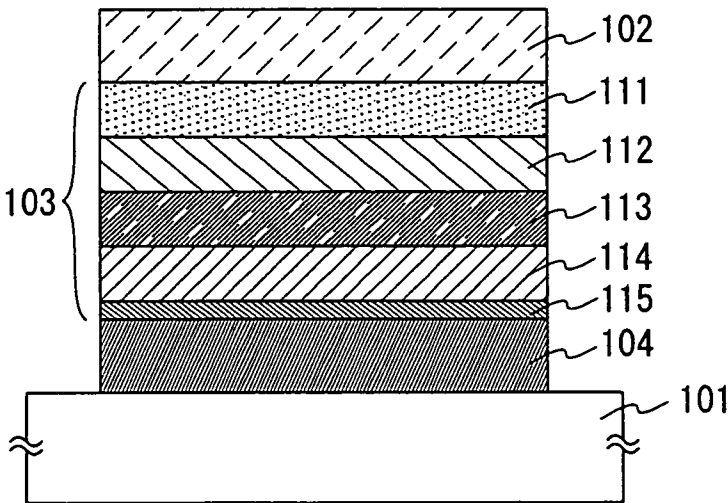


圖 2A

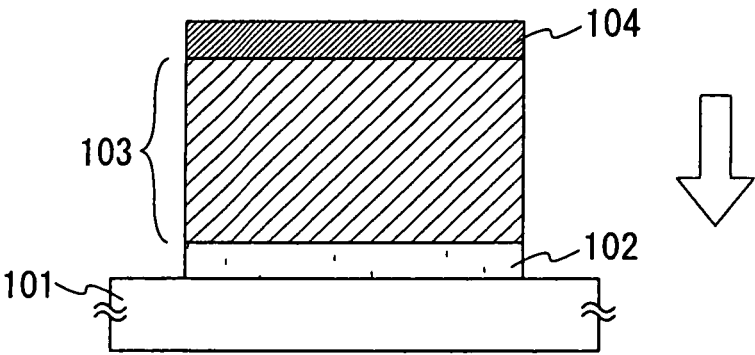


圖 2B

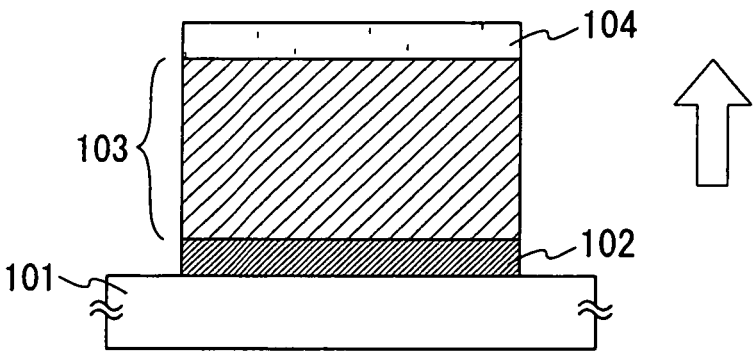


圖 2C

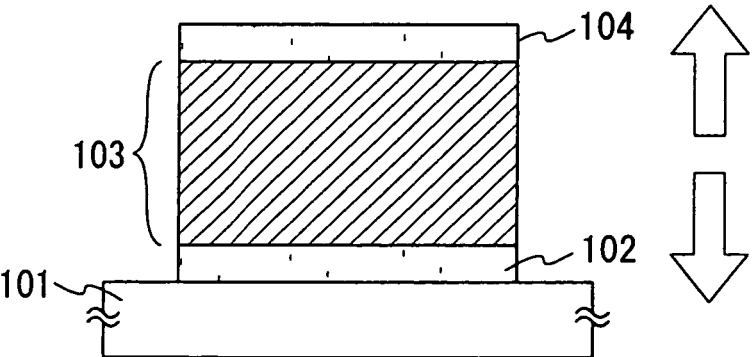


圖 3

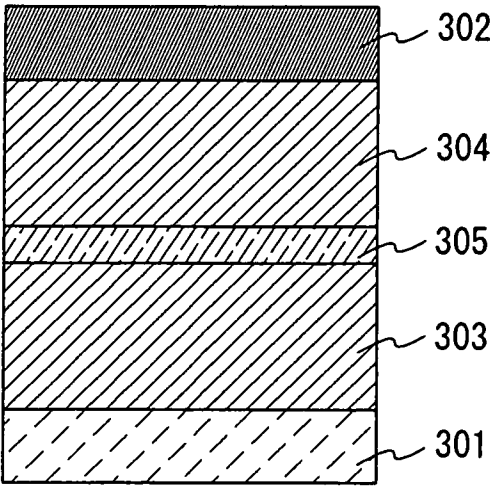


圖 4A

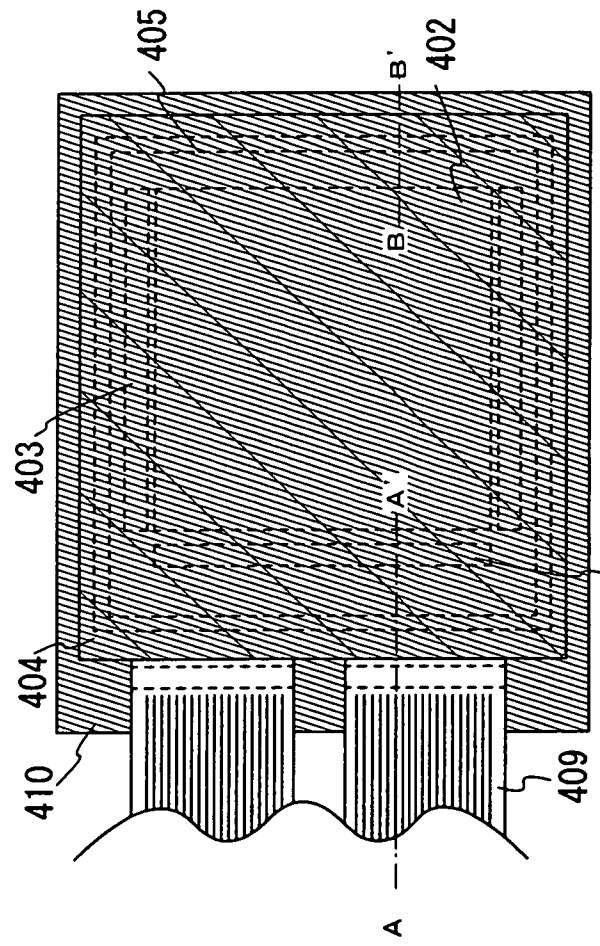


圖 4B

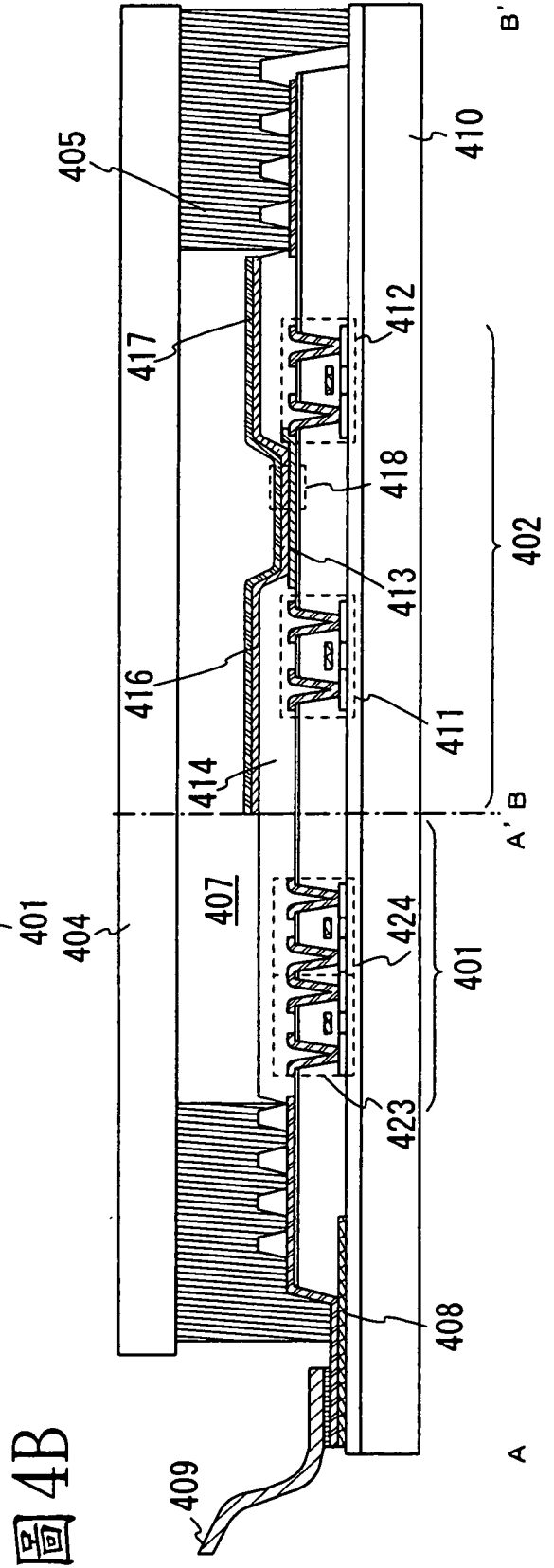


圖 5A

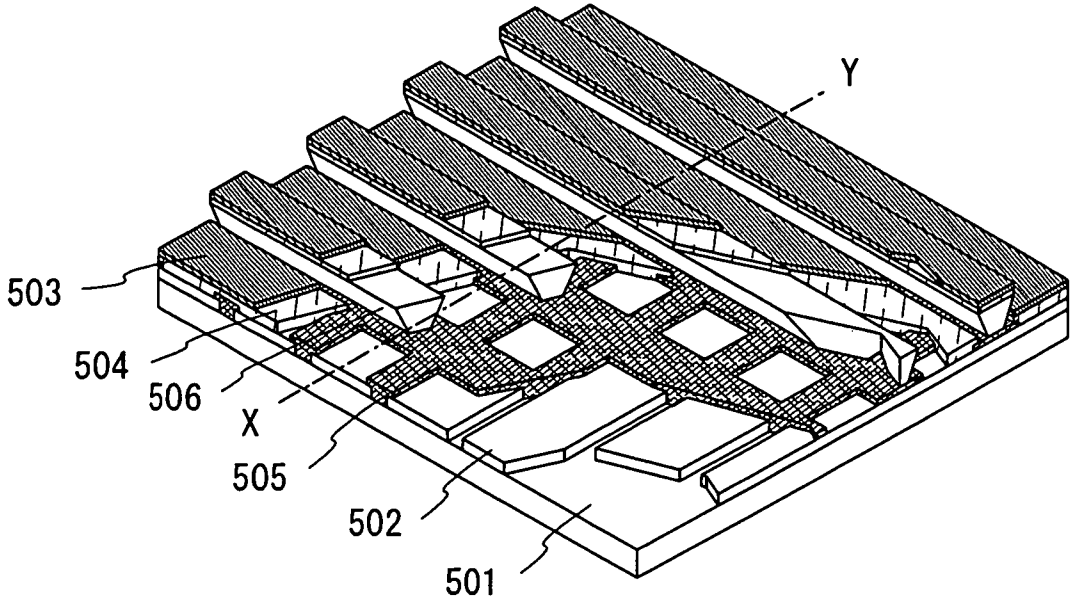


圖 5B

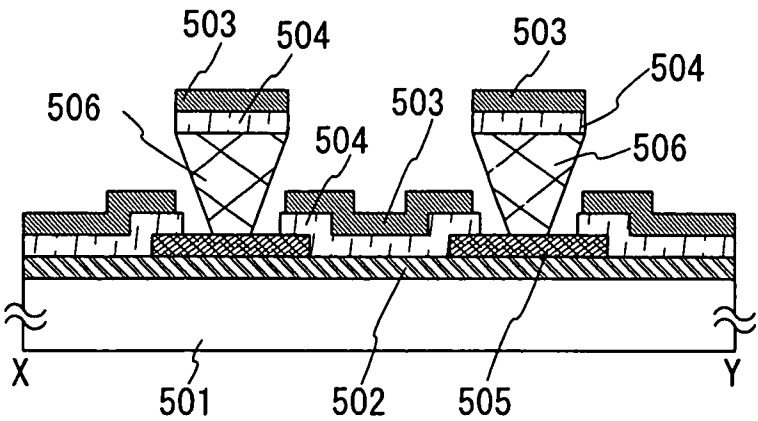


圖 6A

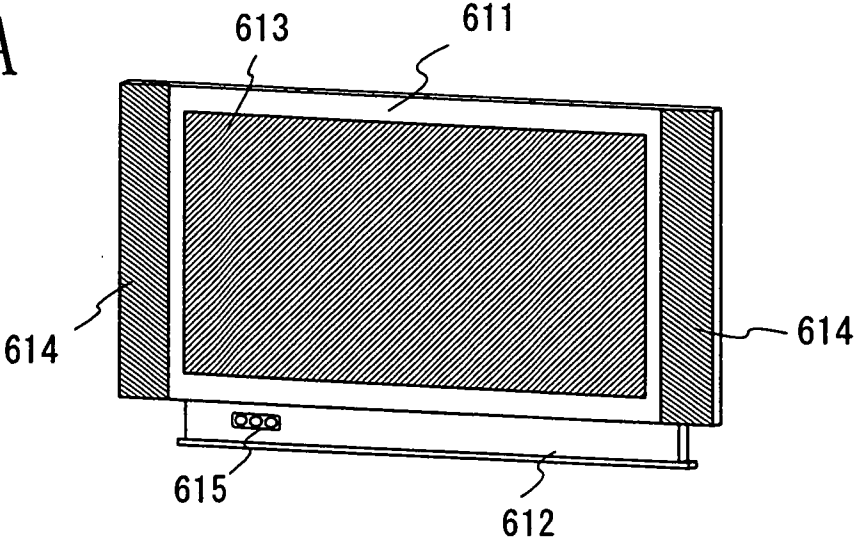


圖 6B

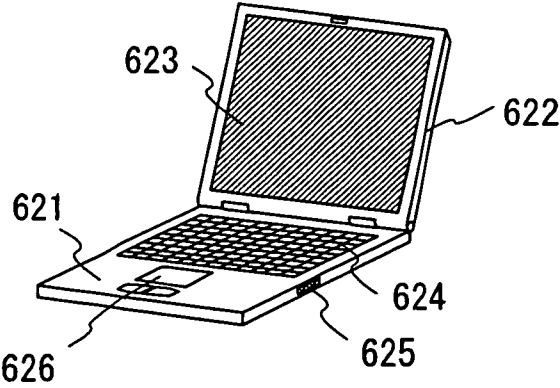


圖 6C

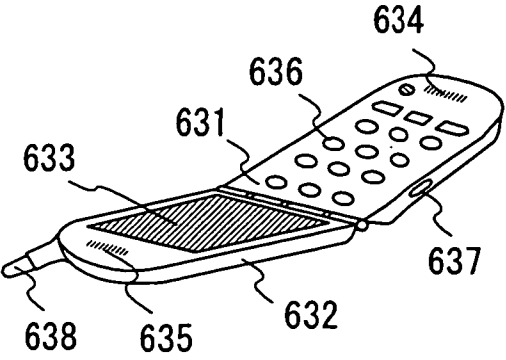


圖 6D

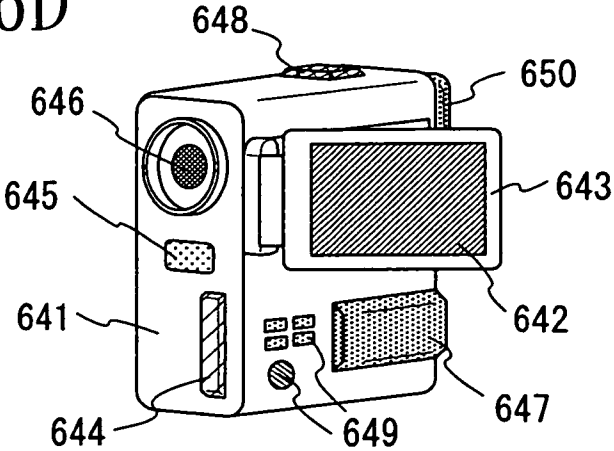


圖 7

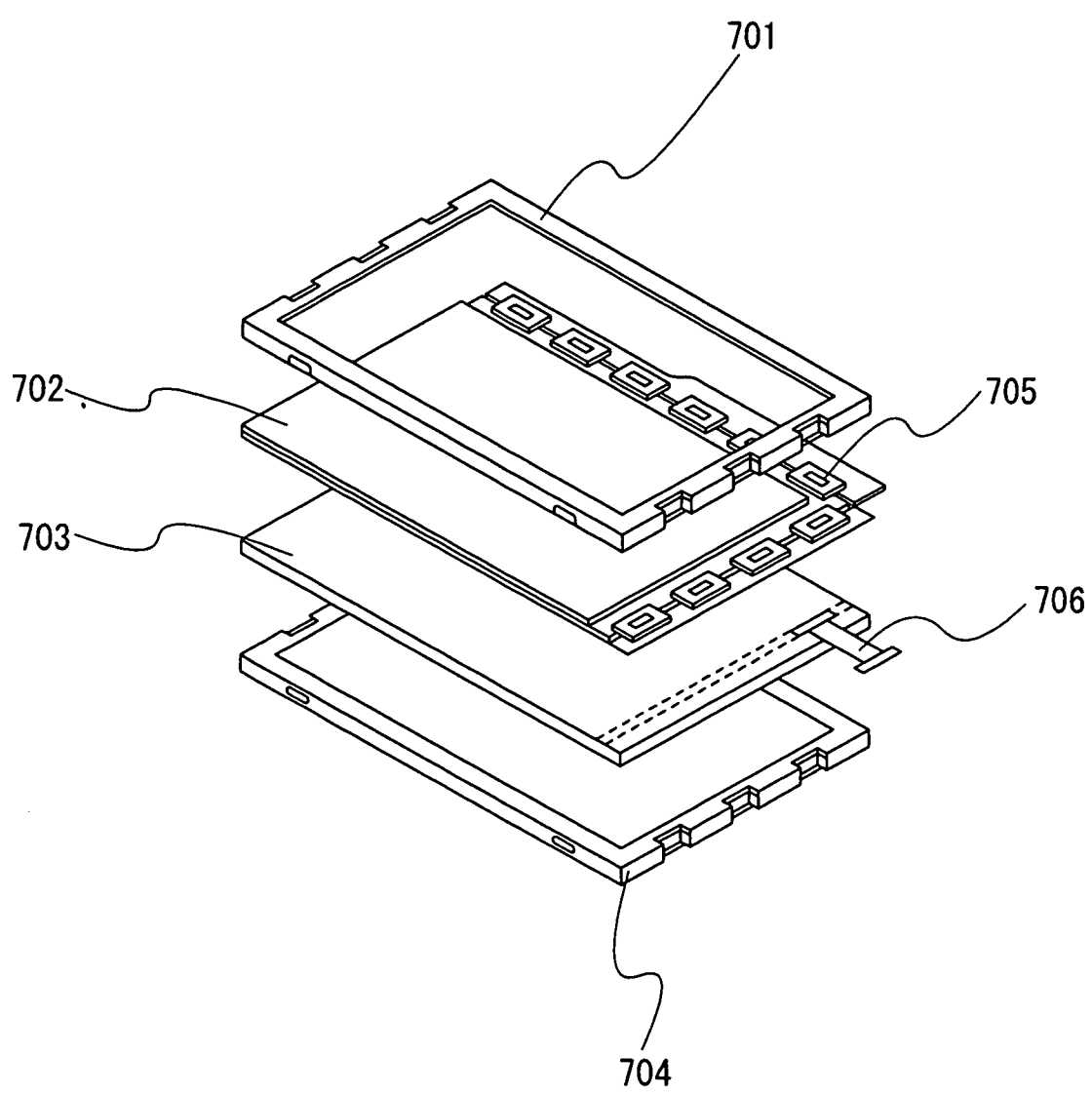


圖 8

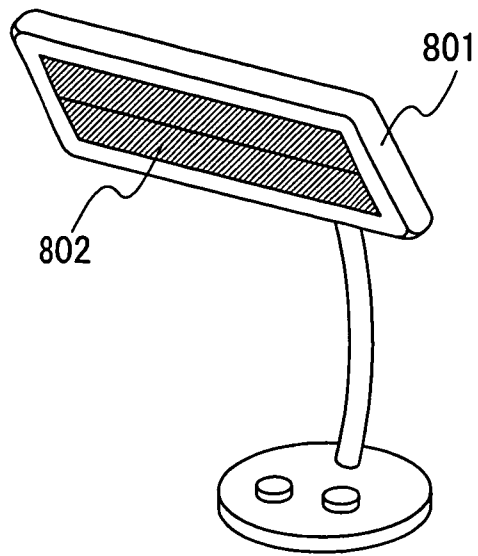


圖9

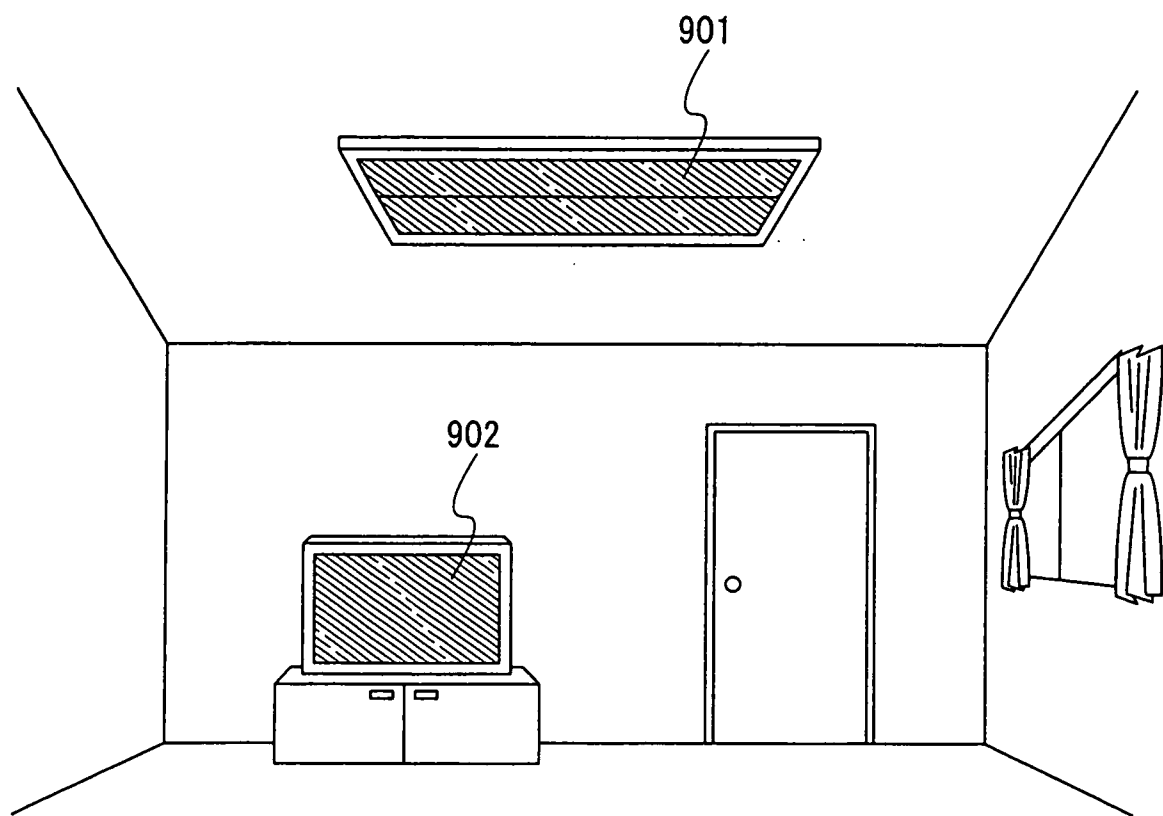


圖 10

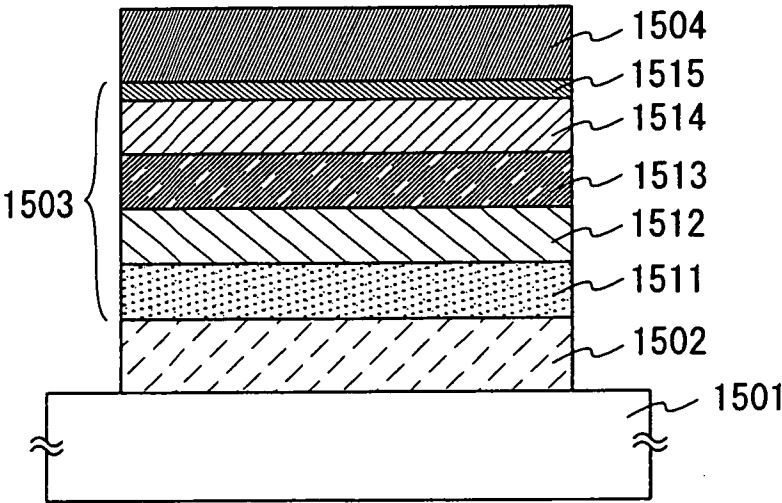


圖 11A

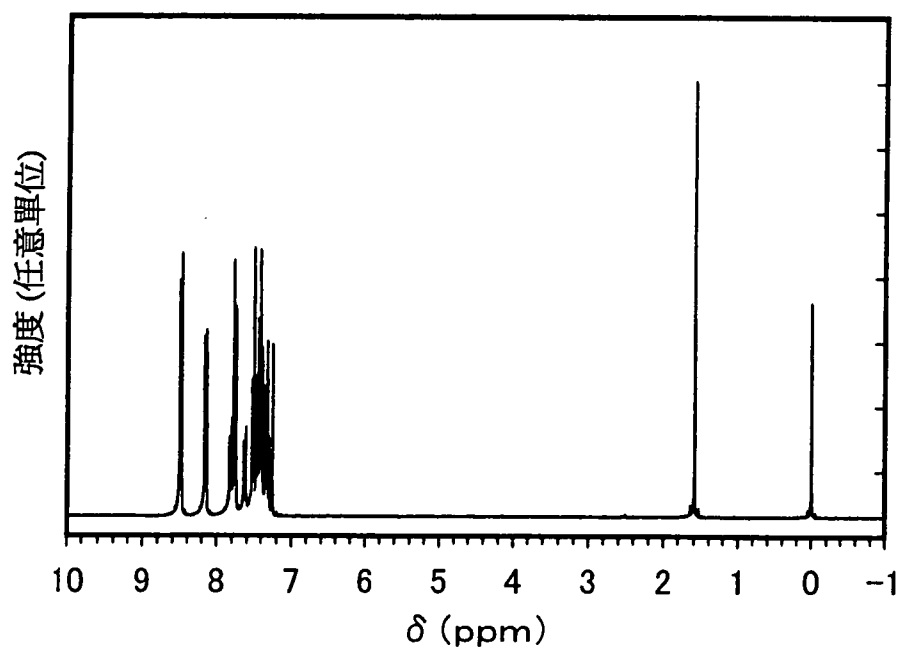


圖 11B

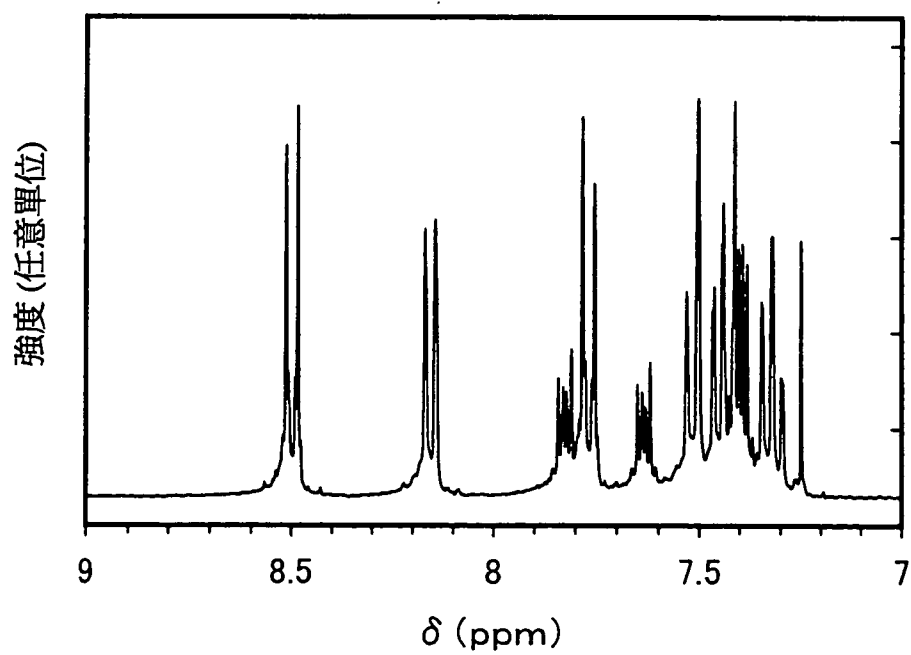


圖 12A

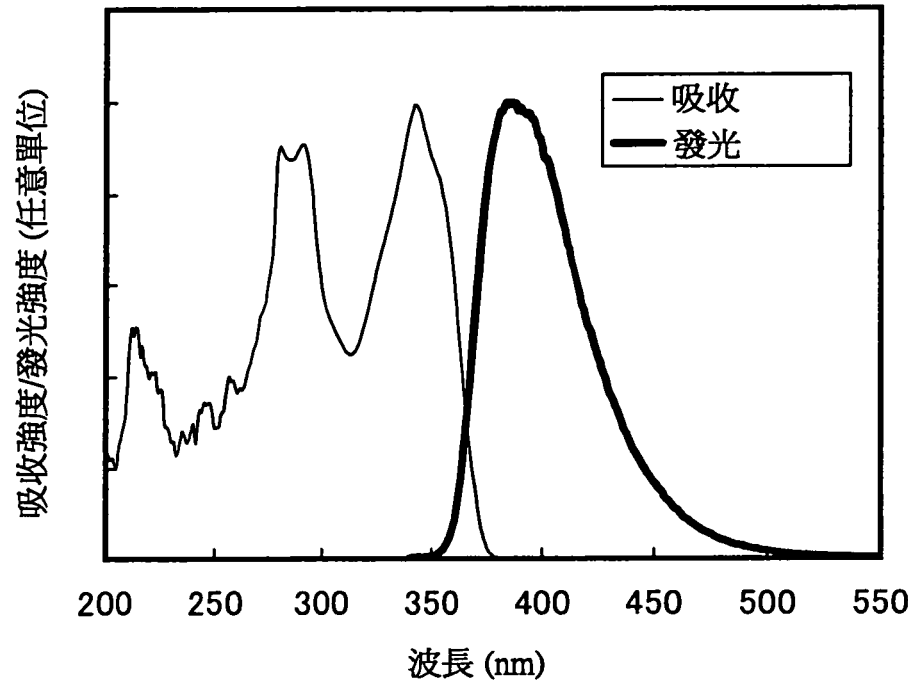


圖 12B

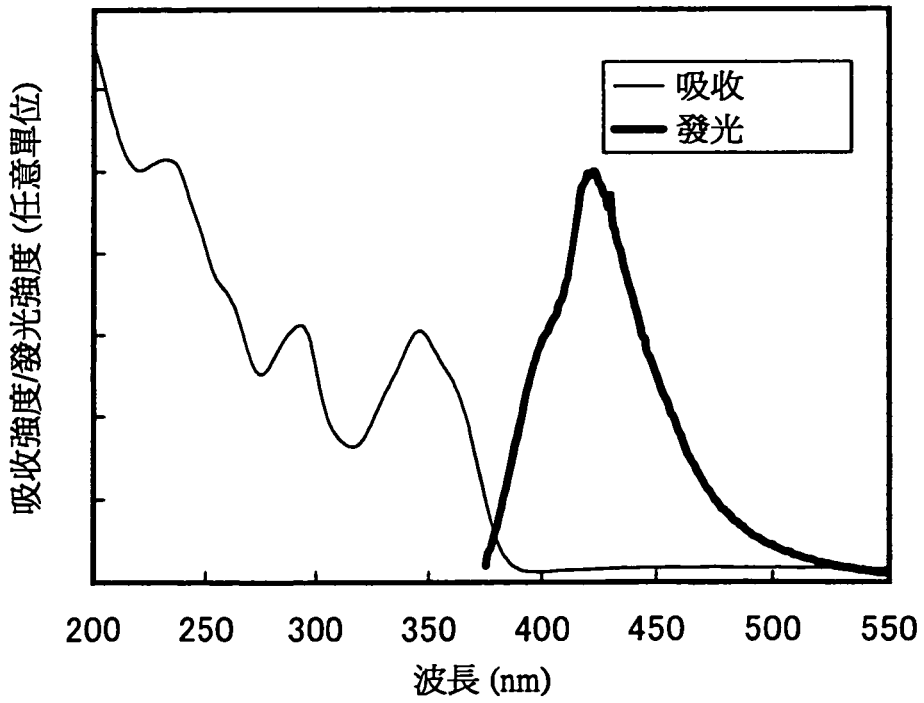


圖 13A

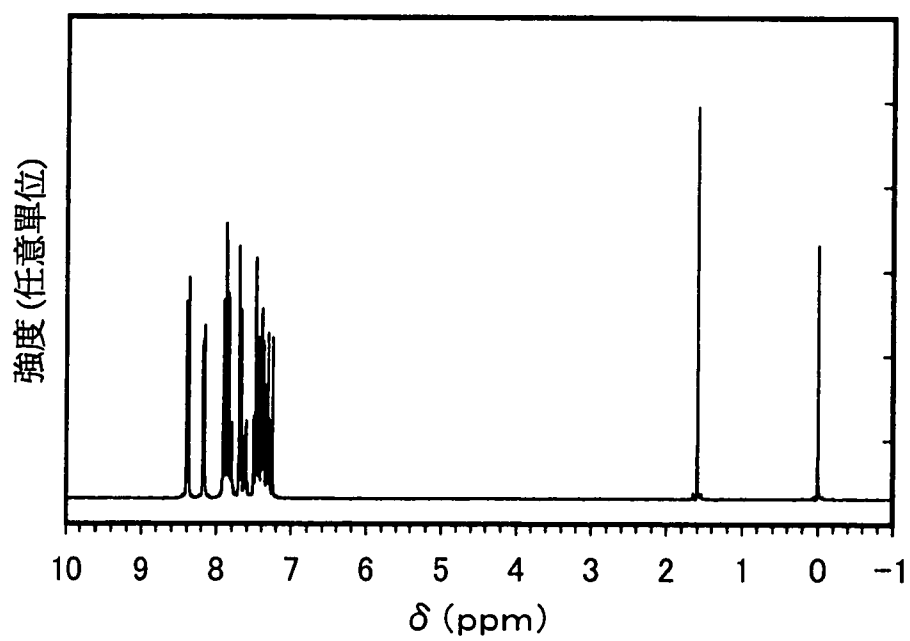


圖 13B

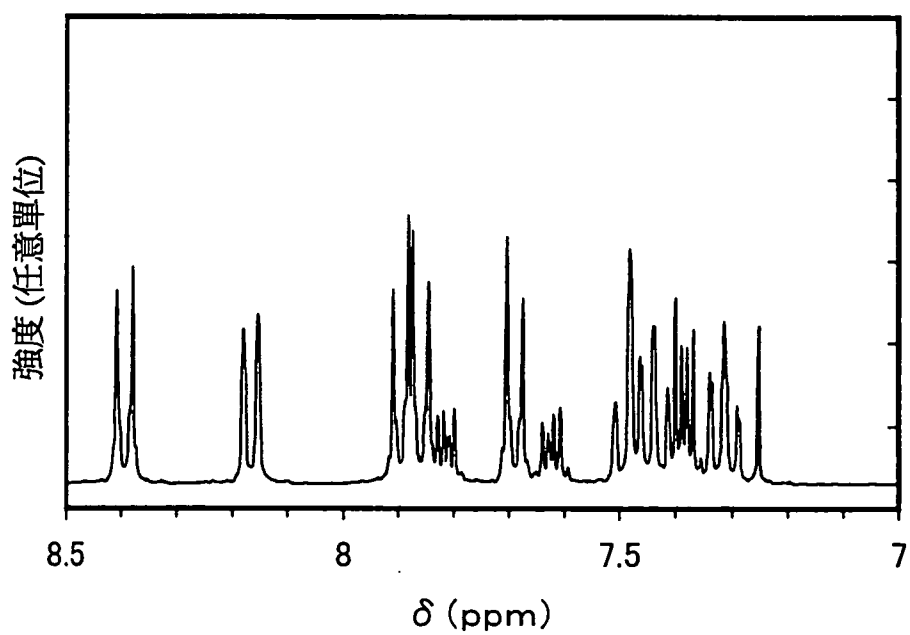


圖 14A

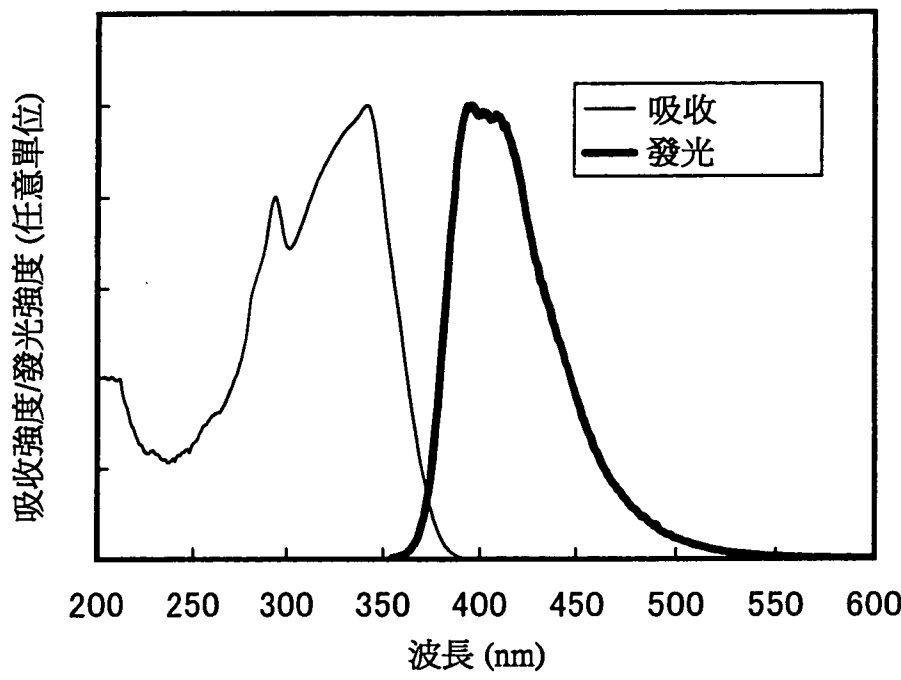


圖 14B

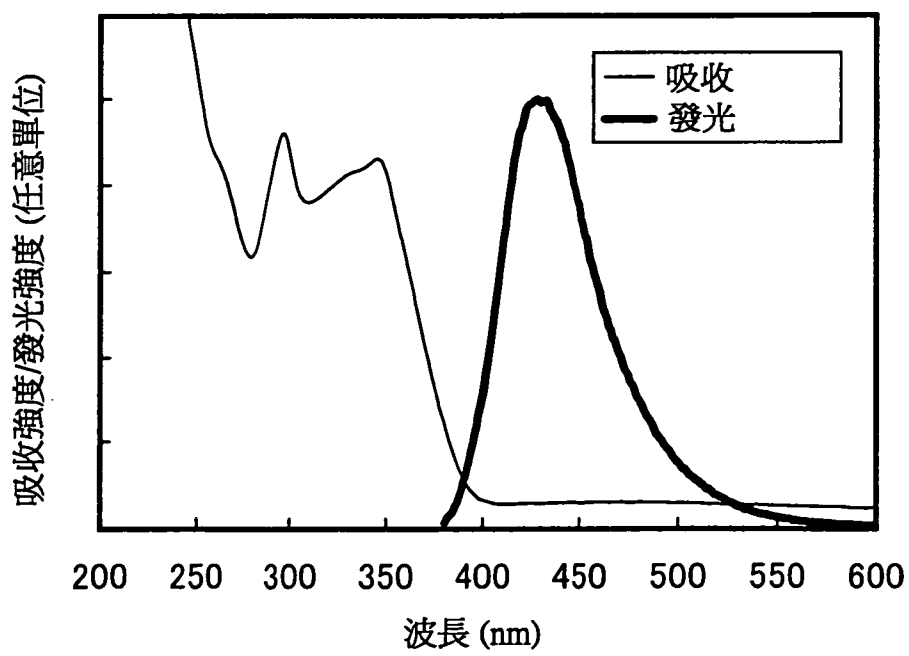


圖 15

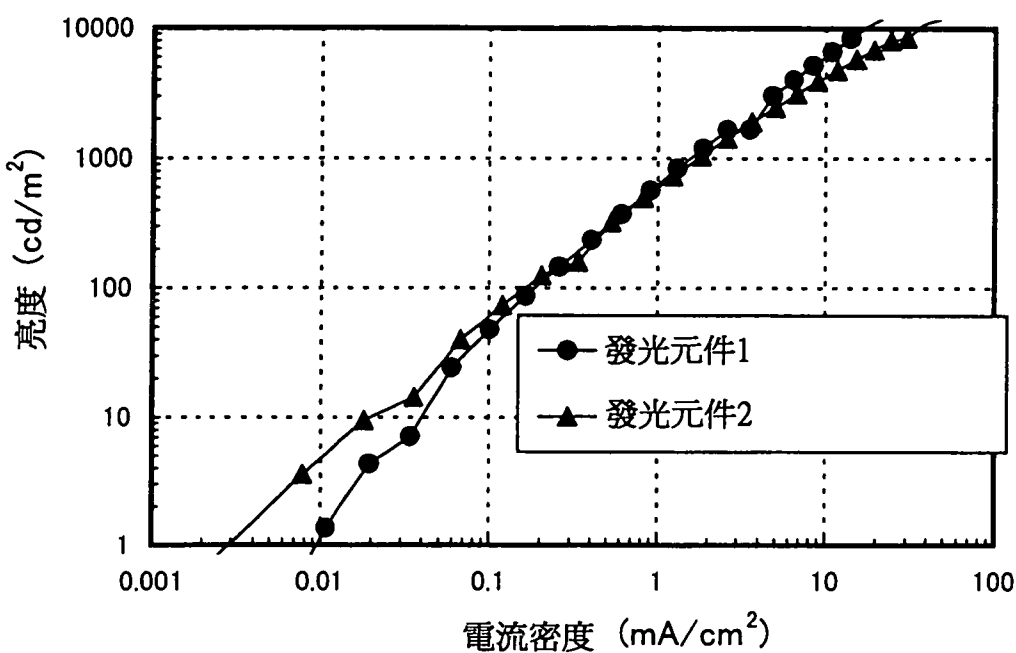


圖 16

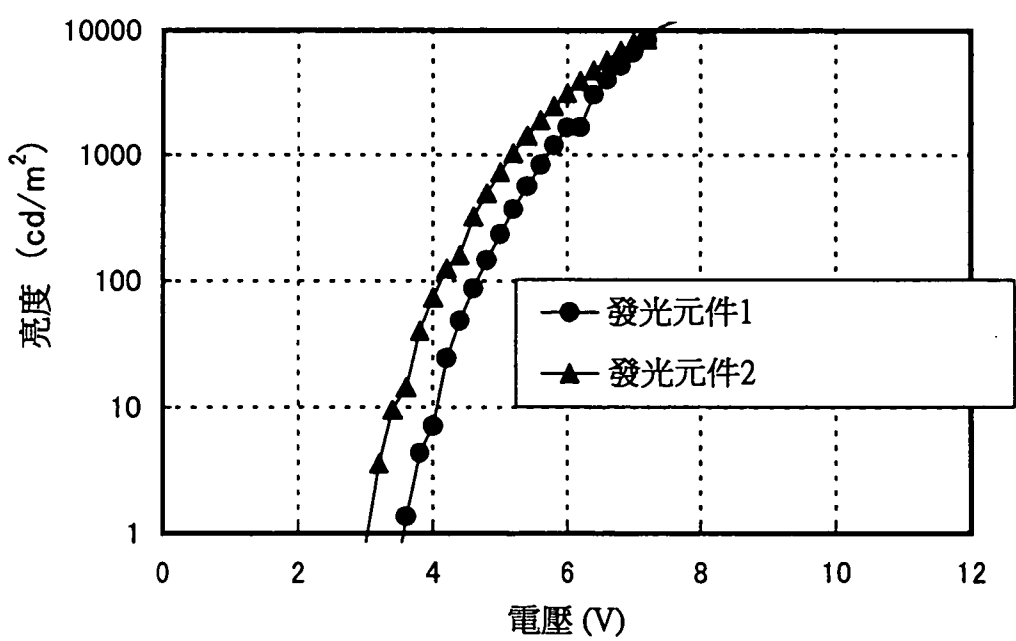


圖 17

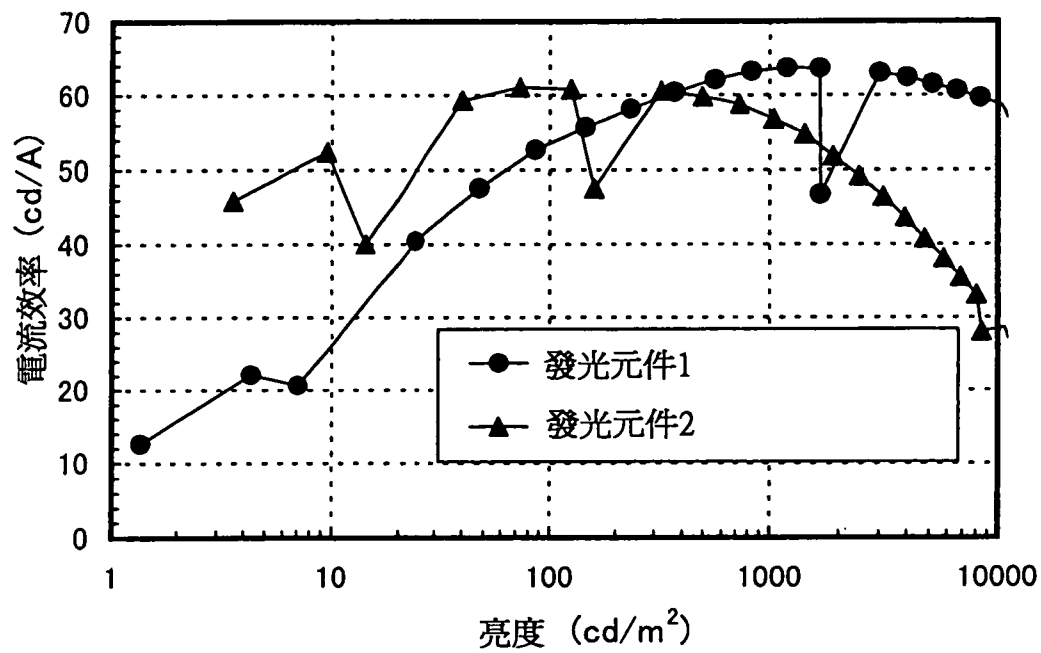


圖 18

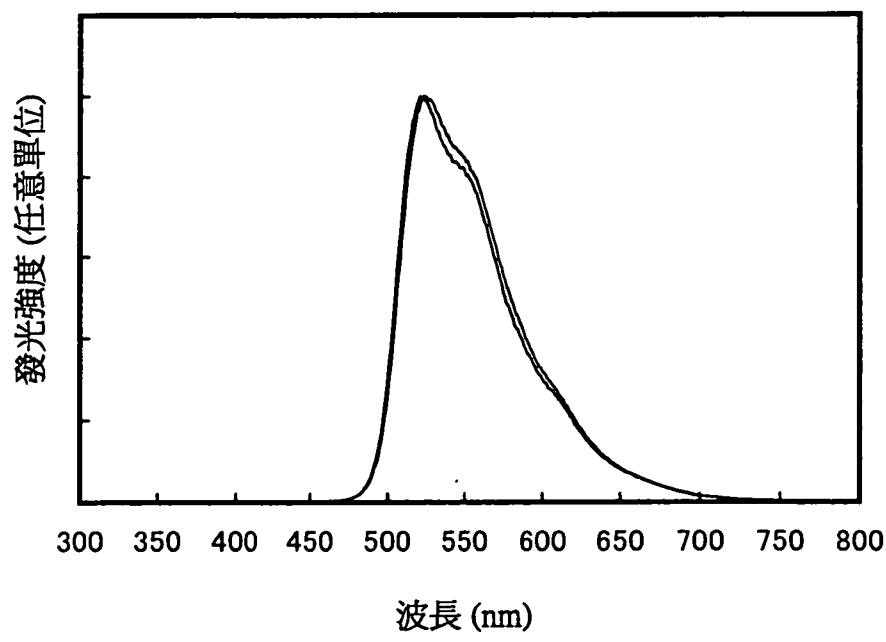


圖 19A

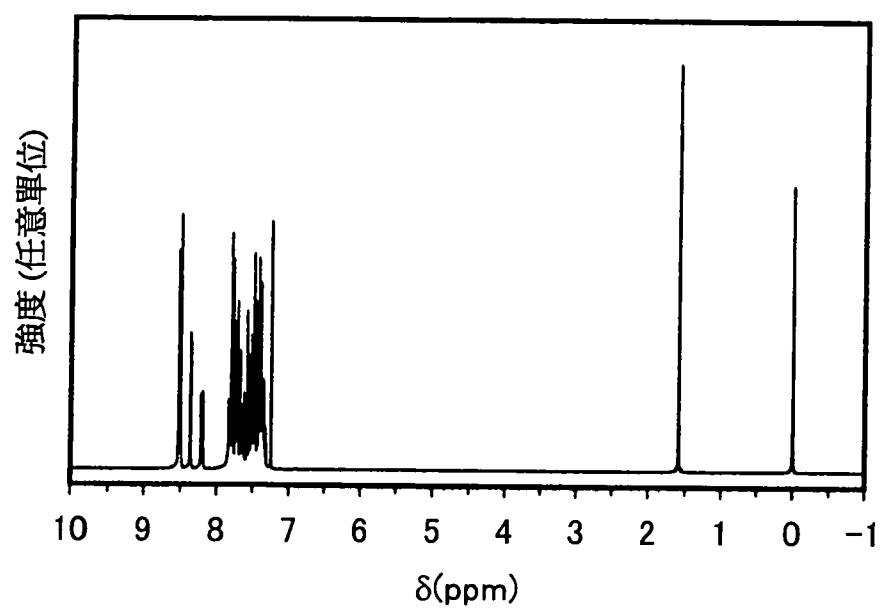


圖 19B

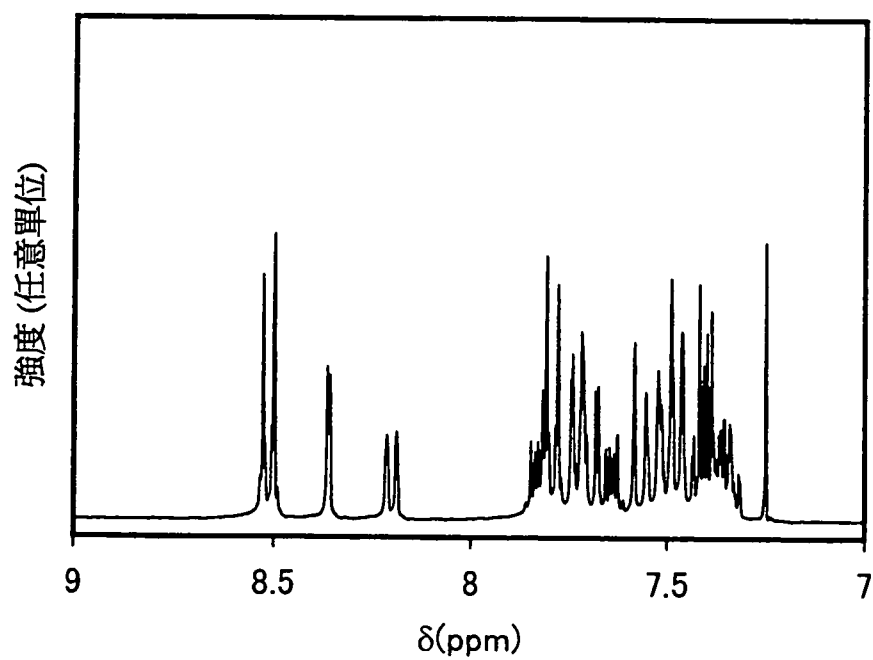


圖 20A

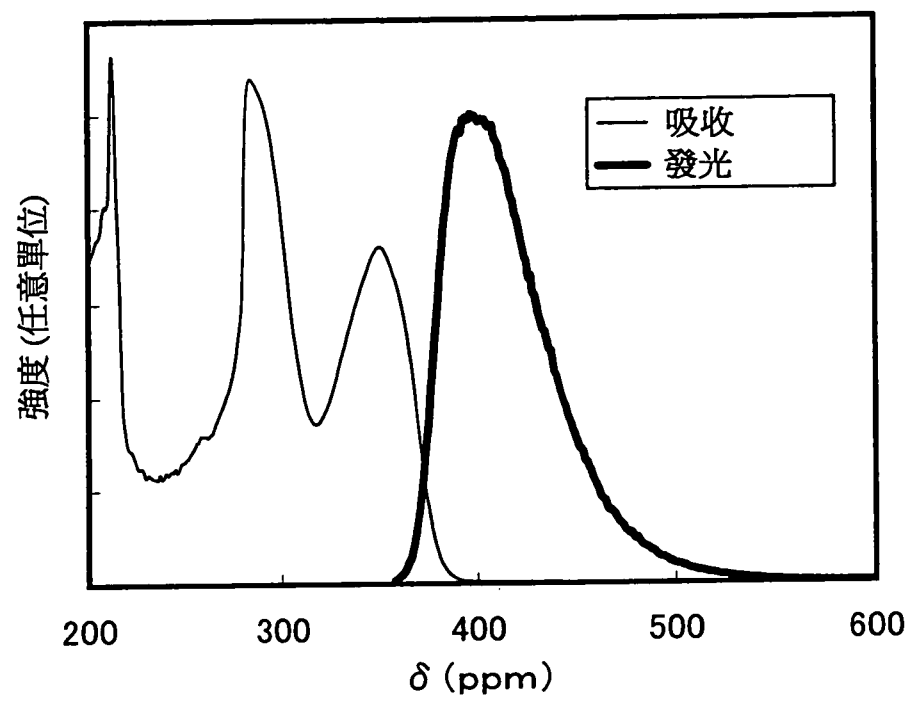


圖 20B

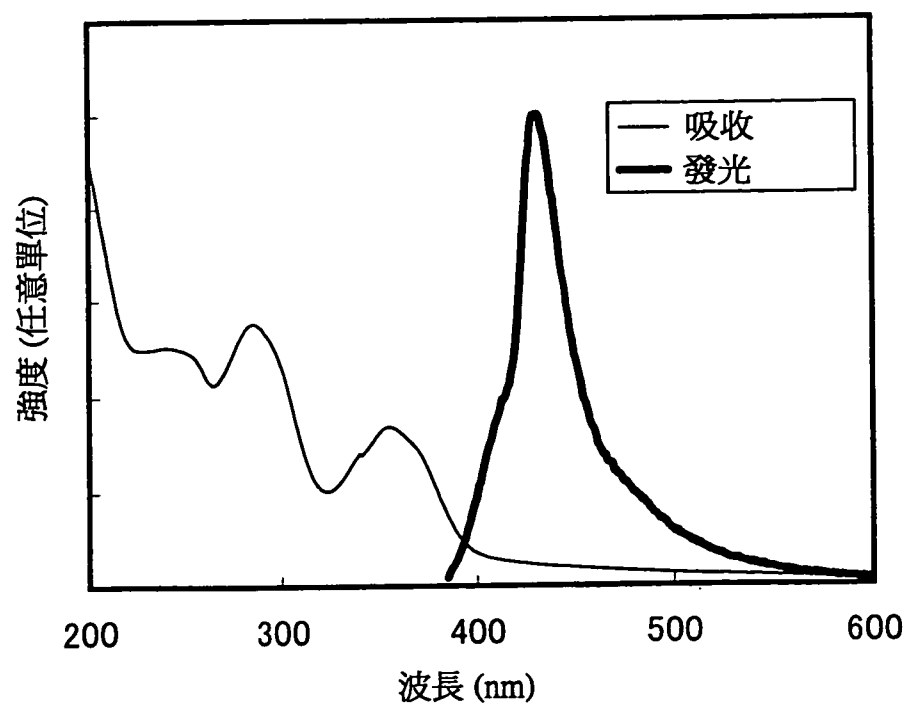


圖 21A

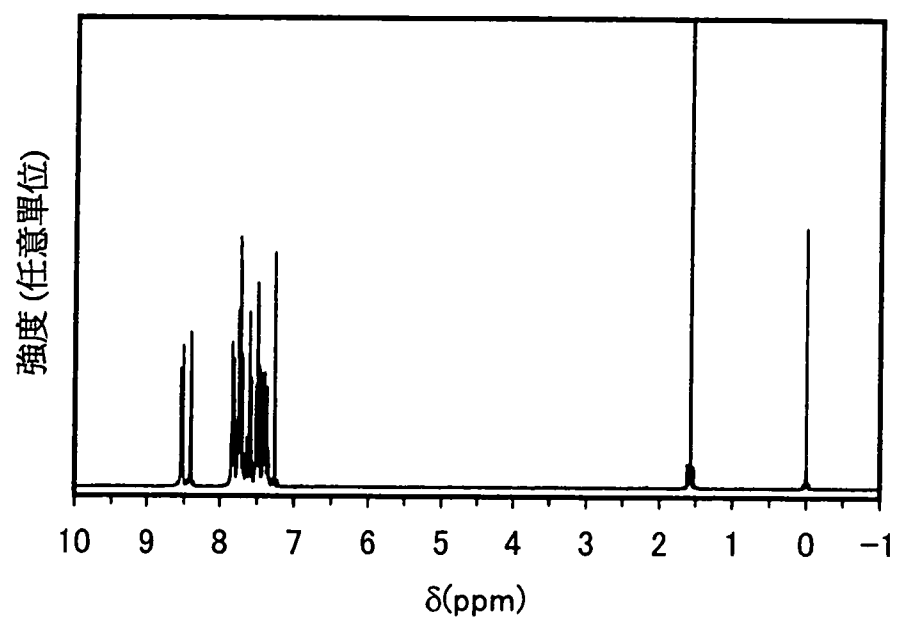


圖 21B

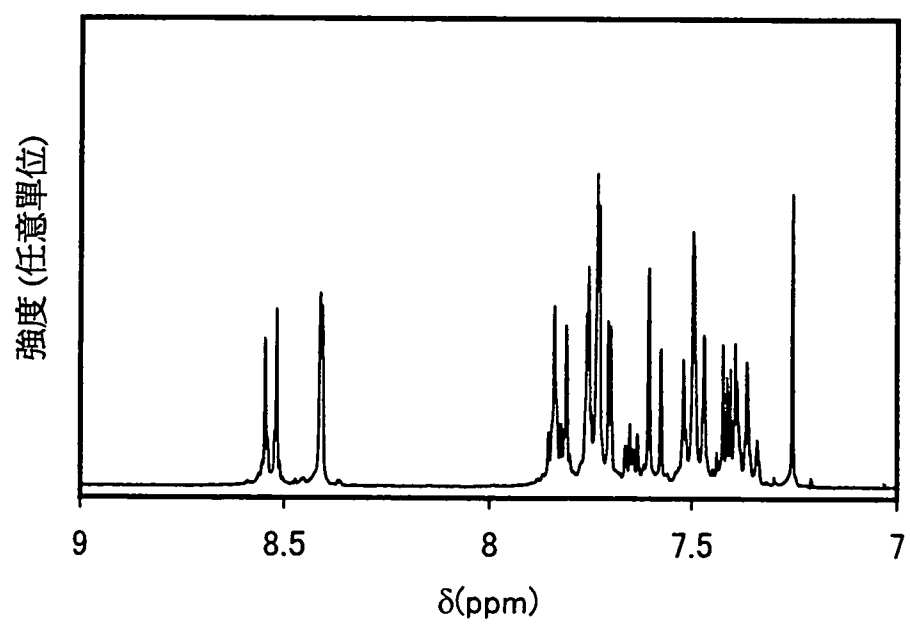


圖 22A

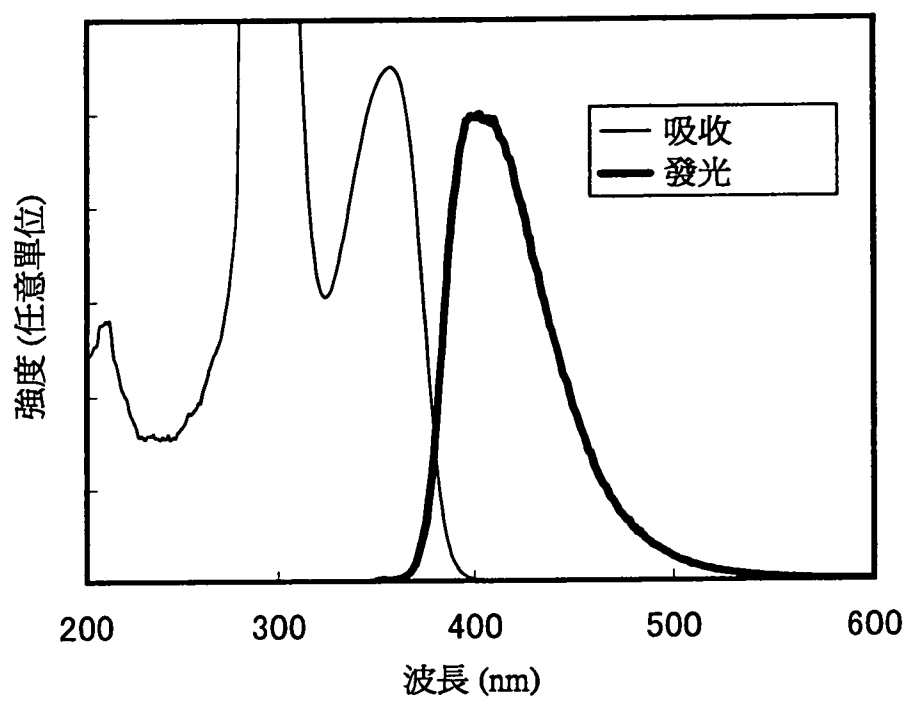


圖 22B

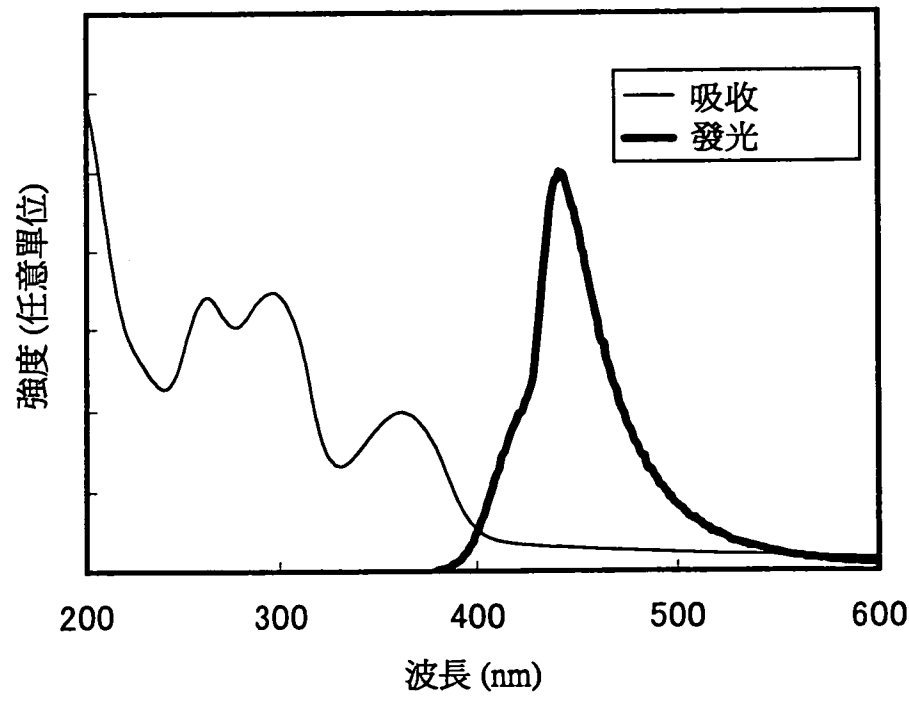


圖 23A

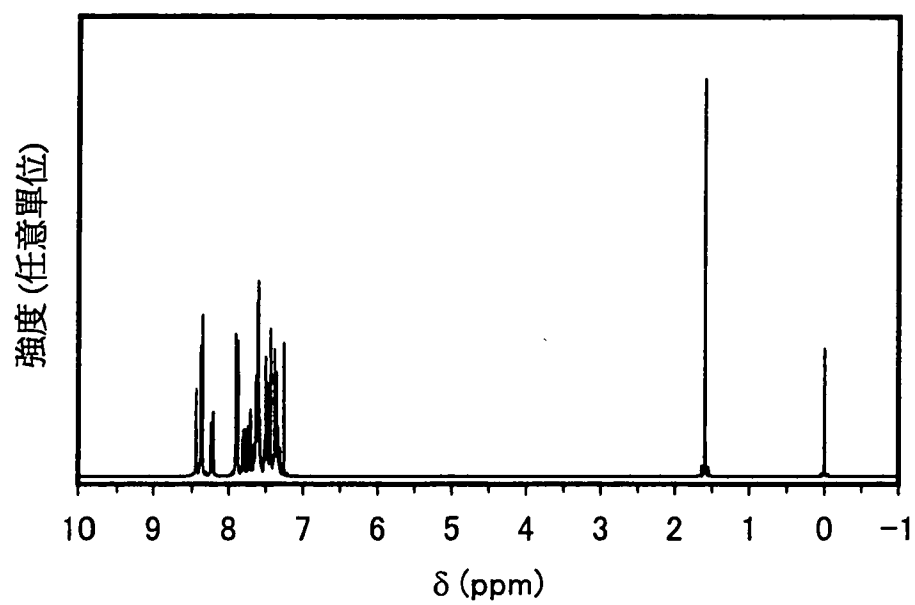


圖 23B

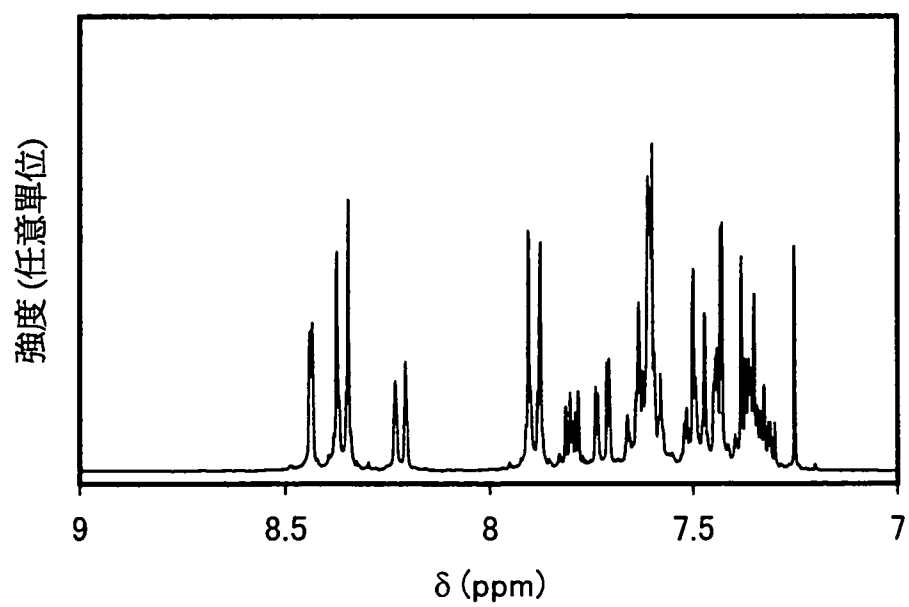


圖 24A

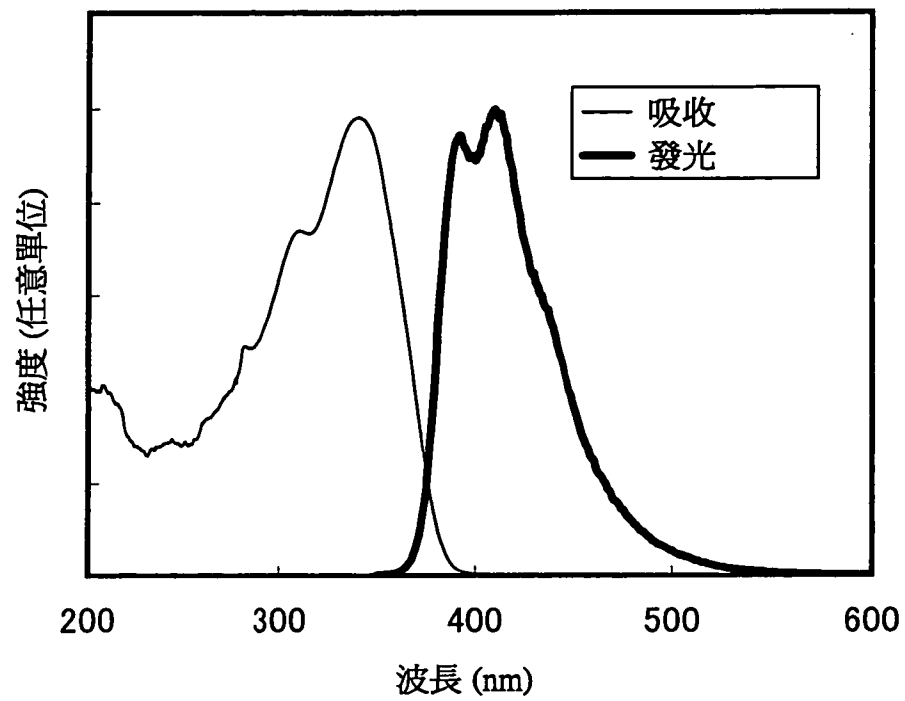


圖 24B

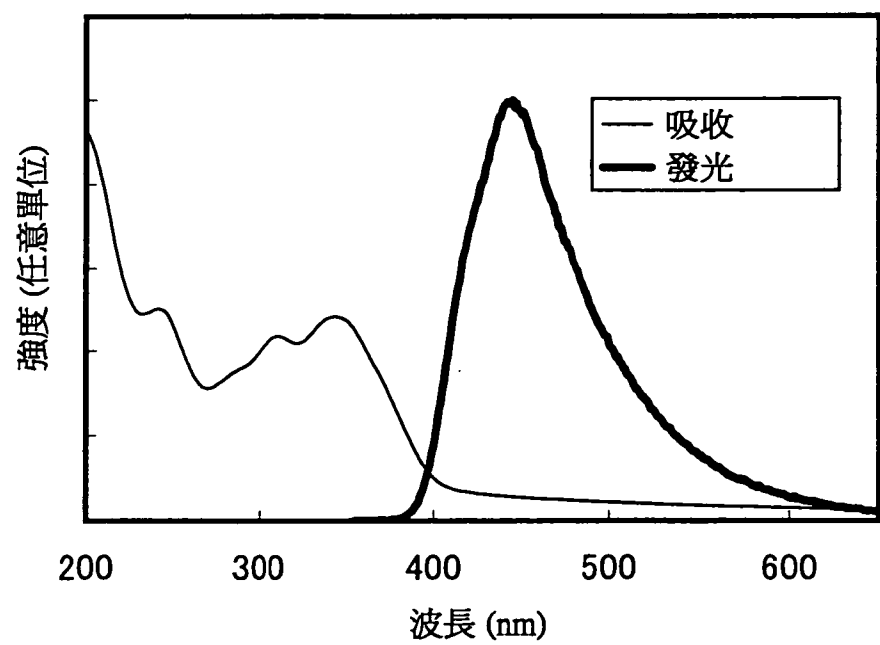


圖 25A

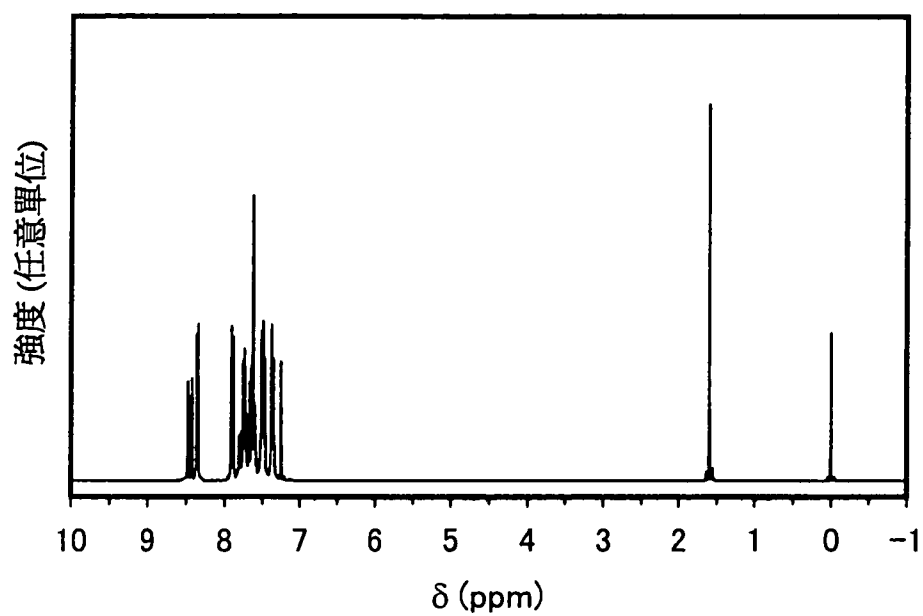


圖 25B

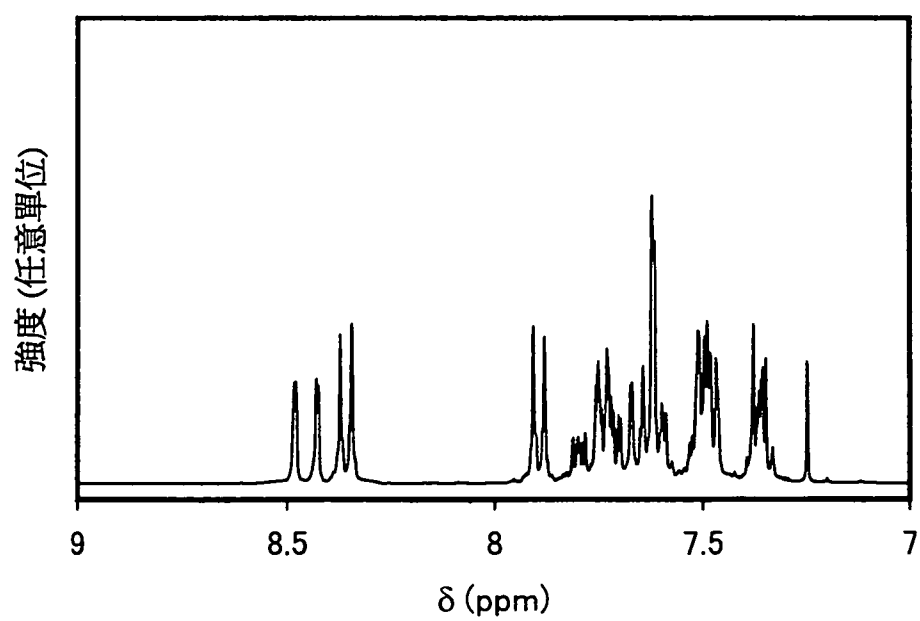


圖 26A

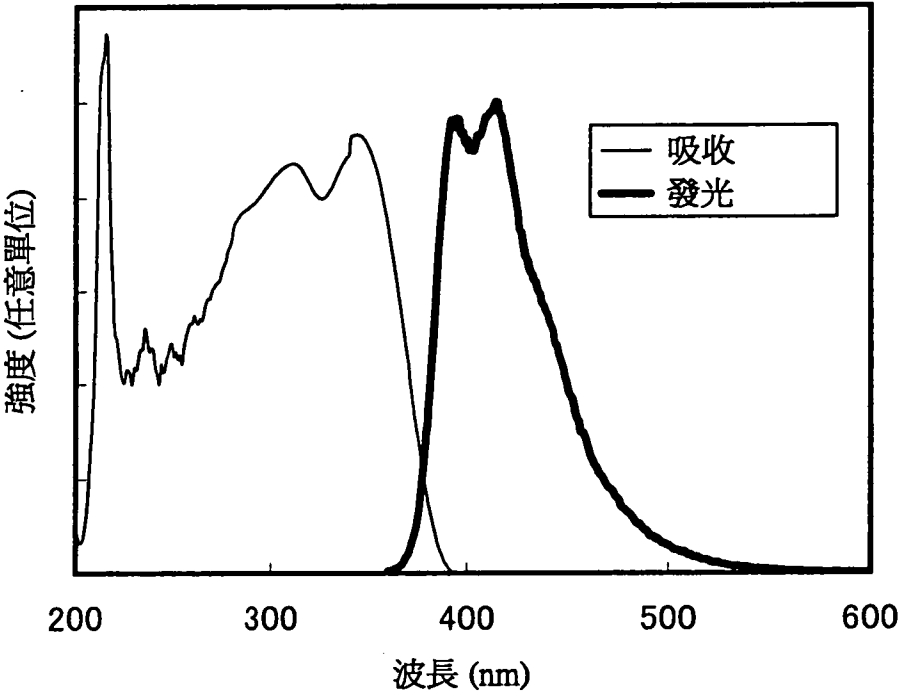


圖 26B

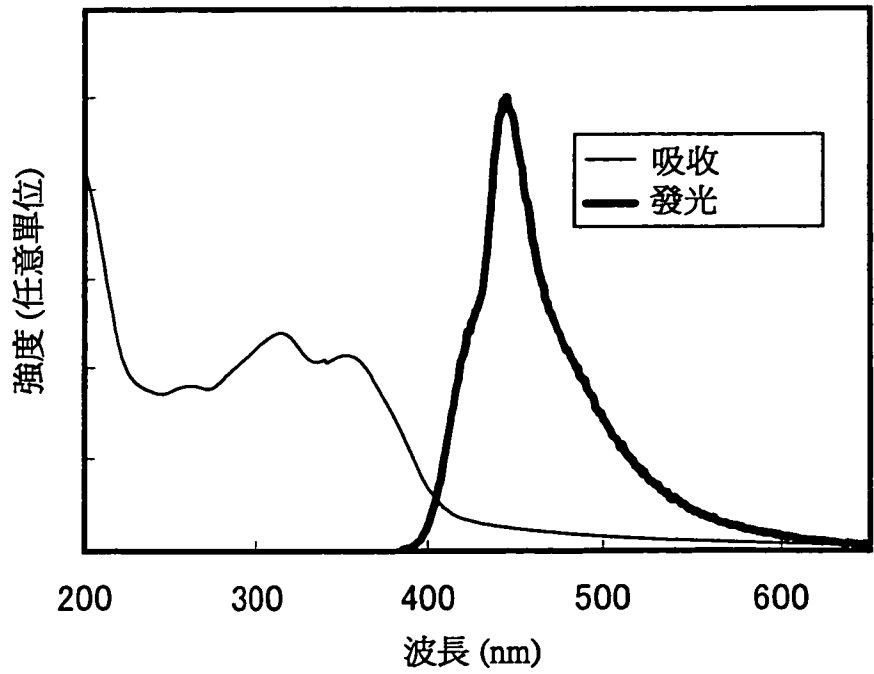


圖 27

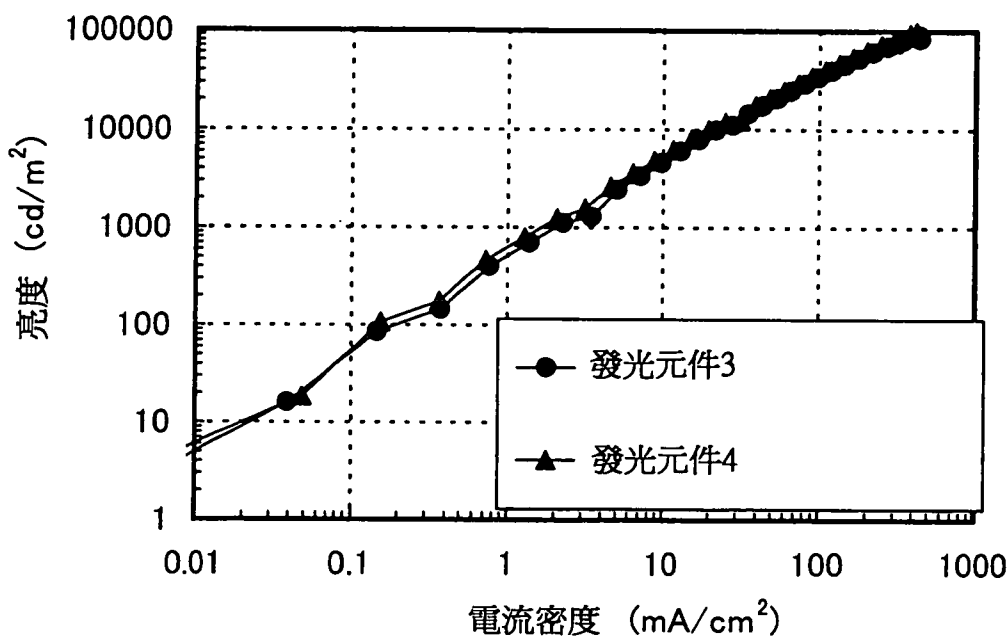


圖 28

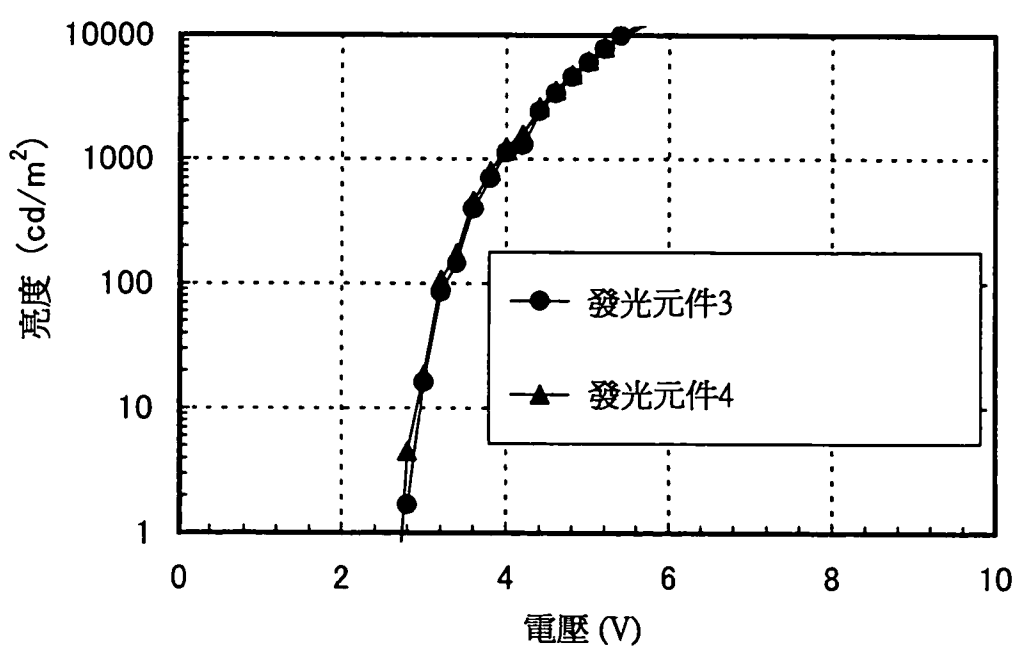


圖 29

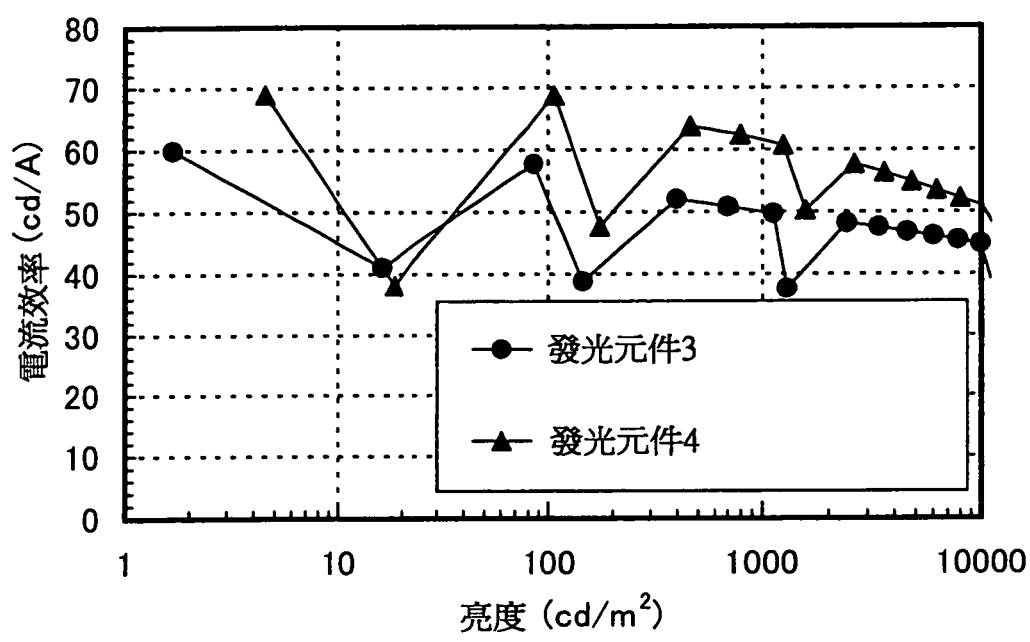


圖 30

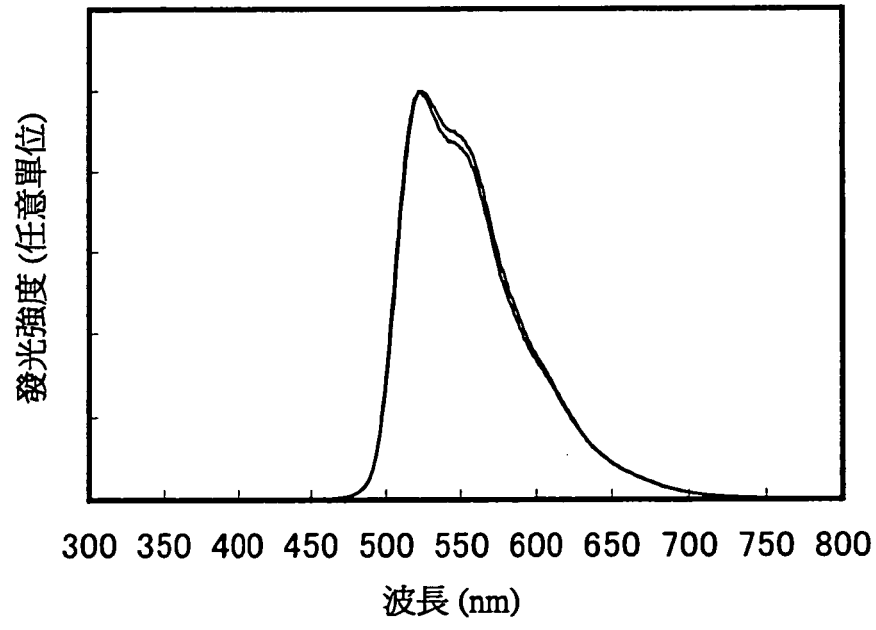


圖31

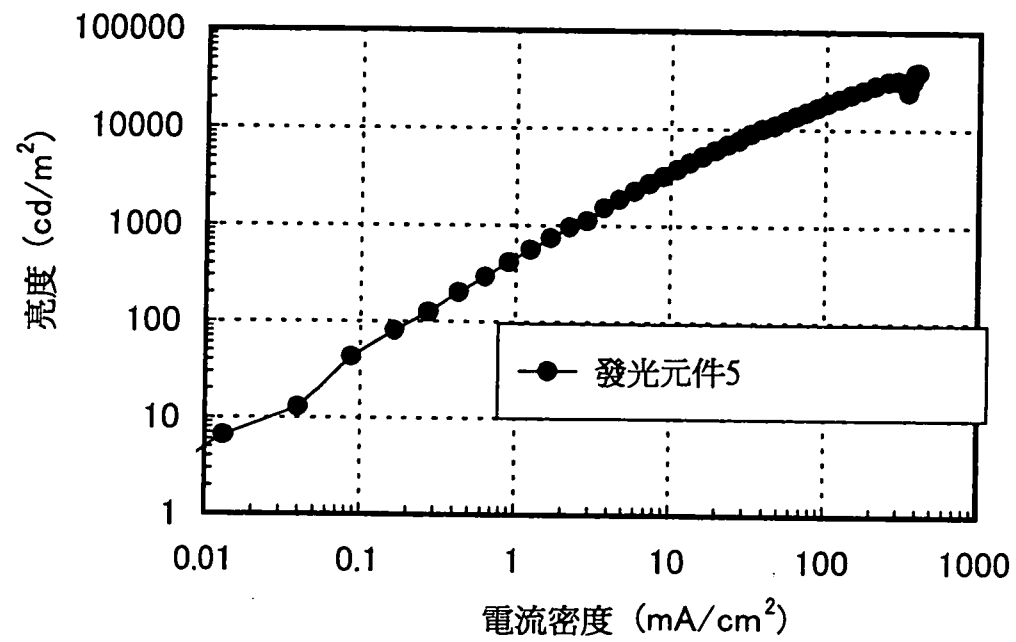


圖32

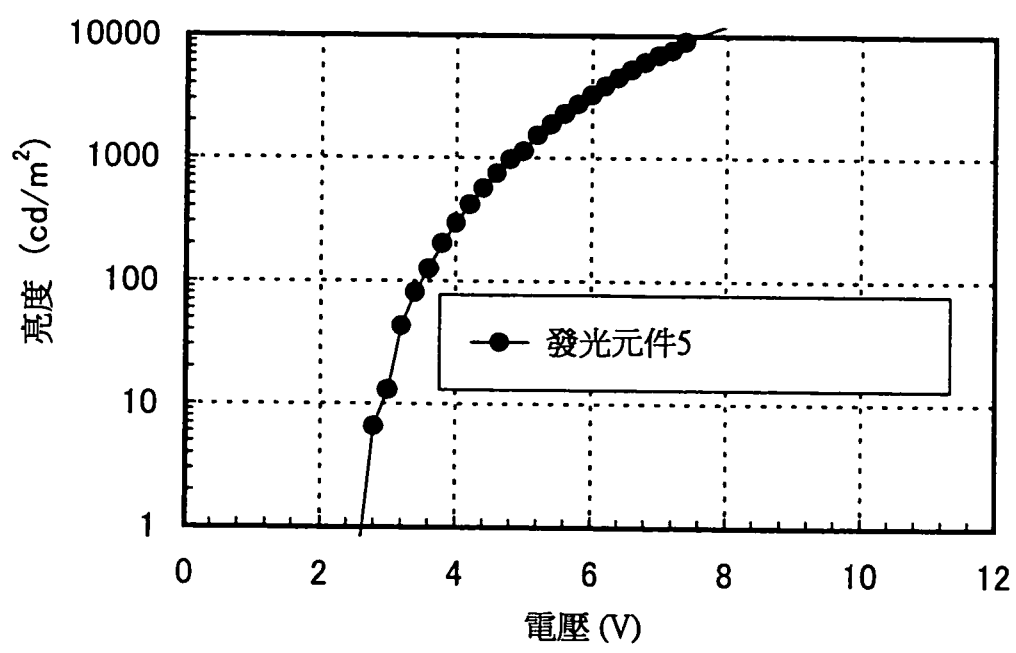


圖 33

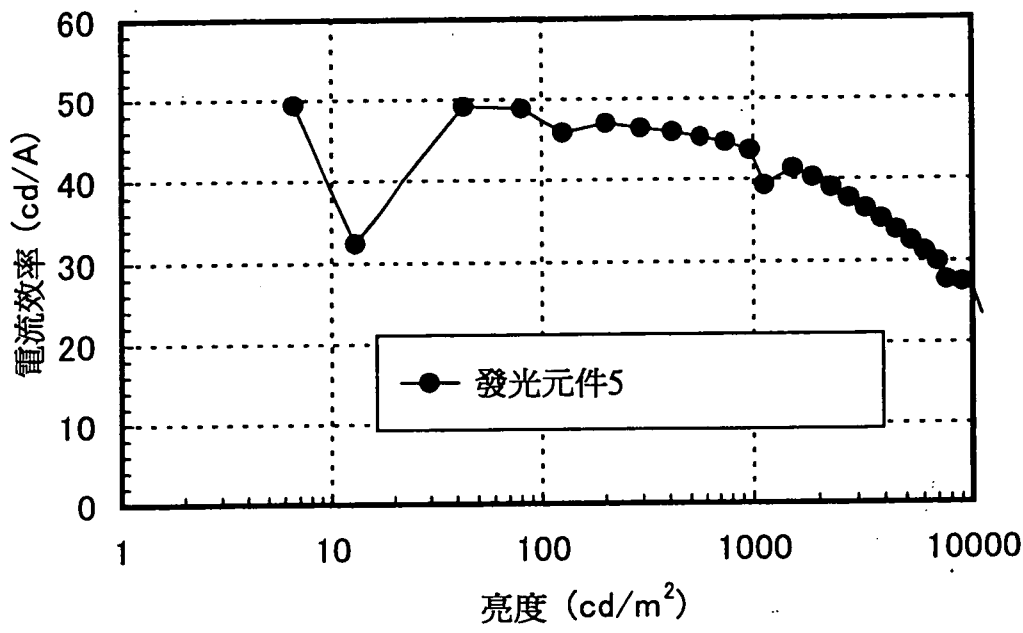


圖 34

